

Abstract attached

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2003-146697
(P2003-146697A)

(43) 公開日 平成15年5月21日 (2003.5.21)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームコード* (参考)
C 0 3 C	8/20	C 0 3 C 8/20	4 G 0 3 0
C 0 4 B	35/00	C 0 4 B 35/46	C 4 G 0 3 1
	35/46	35/49	Z 4 G 0 6 2
	35/49	H 0 1 B 3/00	A 5 G 3 0 3
H 0 1 B	3/00	3/08	A

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 28 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2001-347055(P2001-347055)

(22) 出願日 平成13年11月13日 (2001.11.13)

(71) 出願人 501440776

有限会社三和電材

群馬県勢多郡赤城村大字津久田236-14

(72) 発明者 角田 修一

群馬県勢多郡赤城村大字津久田236-14

有限会社三和電材内

(74) 代理人 100092808

弁理士 羽鳥 亘

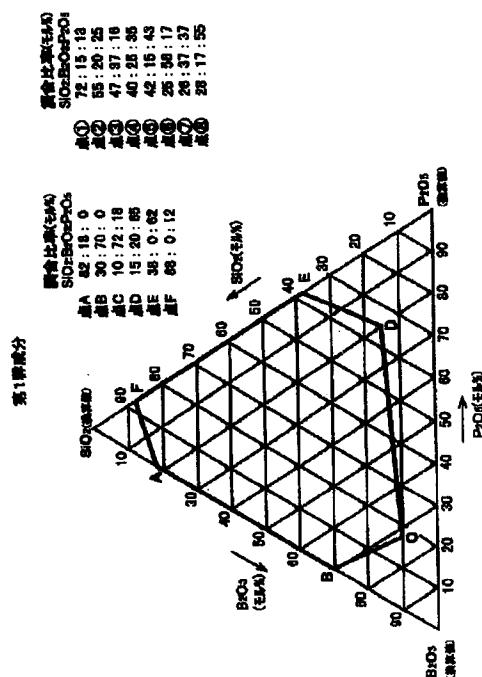
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 誘電体組成物

(57) 【要約】

【目的】 ガラス誘電体組成物、ガラス/磁器複合型誘電体組成物、ガラス誘電体ペースト、及びコンデンサ素子を提供する。

【構成】 SiO_2 、 B_2O_3 及び P_2O_5 から選択された2種以上を28～80モル%と、 Li_2O 、 Na_2O 及び K_2O から選択された1種又は2種以上を5～58モル%と、 MgO 、 CaO 、 SrO 及び BaO から選択された2種以上を0～45モル%とを調合溶解してなるガラス誘電体組成物、及び当該ガラス誘電体組成物を微粉砕後、樹脂や溶剤等と混練したガラス誘電体ペーストや磁器誘電体粉末 (例えば BaTiO_3 、 SrTiO_3 、 MgTiO_3 、 CaTiO_3 、 CaZrO_3 等) と混合、仮焼してなるガラス/磁器複合型誘電体組成物を使用することで、大気中、不活性ガス雰囲気中或いは還元ガス雰囲気中の何れの雰囲気下でも焼成温度1100℃以下、且つ保持時間1時間以内で緻密な焼結構造を有する安価なコンデンサ素子が作れる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】酸化物換算表示が二酸化ケイ素(SiO_2)で表される原料と、少なくとも酸化物換算表示が酸化ホウ素(B_2O_3)、酸化リン(P_2O_5)、酸化リチウム(Li_2O)、酸化ナトリウム(Na_2O)、酸化カリウム(K_2O)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、酸化ストロンチウム(SrO)及び酸化バリウム(BaO)で表される一つ以上を原料とし、モル％表示の組成式、 $a\text{SiO}_2 + b\text{B}_2\text{O}_3 + c\text{P}_2\text{O}_5 + d\text{Li}_2\text{O} + e\text{Na}_2\text{O} + f\text{K}_2\text{O} + g\text{MgO} + h\text{CaO} + i\text{SrO} + j\text{BaO}$ で表される $a \sim j$ までの係数が、 $1.8 \leq a \leq 70.4$ 、 $0 \leq b \leq 57.6$ 、 $0 \leq c \leq 52.0$ 、 $0 \leq d \leq 62.56$ 、 $0 \leq e \leq 39.44$ 、 $0 \leq f \leq 68.0$ 、 $0 \leq g \leq 34.0$ 、 $0 \leq h \leq 34.0$ 、 $0 \leq i \leq 34.0$ 、 $0 \leq j \leq 34.0$ を満足する条件で調合してガラス化させたガラス誘電体組成物であり、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率が1モル％未満であることを特徴とするガラス誘電体組成物。

【請求項2】請求項1に記載のガラス誘電体組成物において、使用する各原料が炭酸化物、水酸化物、塩化物、硫化物、窒化物、フッ化物、硝酸化物、硫酸化物、水化物、有機化合物或いは各原料同士の化合物であって、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率が1モル％未満であることを特徴とするガラス誘電体組成物。

【請求項3】請求項1または請求項2に記載のガラス誘電体組成物を粉末状に粉砕し、その平均粒径が $0.5 \mu\text{m}$ 以上 $5.0 \mu\text{m}$ 未満の範囲であり、且つ最大粒径が $100 \mu\text{m}$ 未満であるガラス誘電体組成物粉末であって、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率が3モル％未満であることを特徴とするガラス誘電体組成物粉末。

【請求項4】請求項3に記載のガラス誘電体組成物粉末と磁器誘電体粉末とを重量比率で、誘電体組成物粉末：磁器誘電体粉末＝ $0.5 : 99.5 \sim 5.0 : 95.0$ で混合した後、露点 50°C 以下の大気中 1000°C 以下の温度で仮焼して成るガラス／磁器複合型誘電体組成物であって、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率が2モル％未満であることを特徴とするガラス／磁器複合型誘電体組成物。

【請求項5】請求項4に記載のガラス／磁器複合型誘電体組成物において、前記磁器誘電体粉末は平均粒径 $10 \mu\text{m}$ 未満且つ最大粒径 $200 \mu\text{m}$ 未満であり、 BaO に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす BaTiO_3 粉末、または SrO に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす SrTiO_3 粉末、または CaO に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす CaTiO_3 粉末、または MgO に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす MgTiO_3 粉末、または CaO に対する ZrO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす CaTiO_3 粉末、または MgO と CaO の合計に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ MgO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たす $(\text{Mg} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot \text{TiO}_2$ 粉末、または BaO と CaO の合計に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot \text{TiO}_2$ 粉末、または BaO と SrO の合計に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する SrO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Sr})\text{O} \cdot \text{TiO}_2$ 粉末、または BaO と SrO と CaO の合計に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する SrO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Sr} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot \text{TiO}_2$ 粉末、または MgO と CaO の合計に対する TiO_2 と ZrO_2 の合計のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ MgO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ TiO_2 に対する ZrO_2 のモル比が $0.01 \sim 0.3$ を満たす $(\text{Mg} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot (\text{Ti} \cdot \text{Zr})\text{O}_2$ 粉末、または BaO と CaO の合計に対する TiO_2 と ZrO_2 の合計のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ TiO_2 に対する ZrO_2 のモル比が $0.01 \sim 0.3$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot (\text{Ti} \cdot \text{Zr})\text{O}_2$ 粉末、または BaO と SrO と CaO の合計に対する TiO_2 と ZrO_2 の合計のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する SrO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ TiO_2 に対する ZrO_2 のモル比が $0.01 \sim 0.3$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Sr} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot (\text{Ti} \cdot \text{Zr})\text{O}_2$ 粉末の何れかであることを特徴とするガラス／磁器複合型誘電体組成物。

【請求項6】請求項3に記載のガラス誘電体組成物粉末30～90重量%、平均分子量1,000,000未満の樹脂2～20重量%と水又は大気圧下 300°C 未満で蒸発する有機溶剤8～50重量%とを混練して成ることを特徴とするガラス誘電体ペースト。

【請求項7】請求項6に記載のガラス誘電体ペーストと、銀(Ag)粉末、金(Au)粉末、白金(Pt)粉末、パラジウム(Pd)粉末、銅(Cu)粉末、亜鉛(Zn)粉末、アルミニウム(Al)粉末、ニッケル(Ni)粉末、鉄(Fe)粉末及びクロム(Cr)粉末の中から選択された1種又は2種以上を混合した粉末25～80重量%と、平均分子量1,000,000未満の樹脂2～20重量%と、水又は大気圧下 300°C 未満で蒸発する有機溶剤からなる溶媒18～45重量%と、シリカ(SiO_2)粉末、アルミナ(Al_2O_3)粉末、ジルコニア(ZrO_2)粉末または酸化チタン(TiO_2)粉末の中から選択された1種又は2種以上を混合した粉末0～10重量%と、を混練して成る導電ペーストと、を使用して磁器基板上に塗布後、単層誘電体のまま或いは複層誘電体に塗り重ねた状態で、露点 50°C 以下の大気中または露点 50°C 以下の不活性ガス雰囲気中または露点 50°C 以下の還元ガス雰囲気中で焼成してなるコンデンサ素子。

【請求項8】請求項5に記載のガラス／磁器複合型誘電

体組成物に平均分子量1,000,000未満の樹脂と大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤を加えて混練したスラリーを板状または筒状またはシート状に成型後、その表面に銀(Ag)粉末、金(Au)粉末、白金(Pt)粉末、パラジウム(Pd)粉末、銅(Cu)粉末、亜鉛(Zn)粉末、アルミニウム(Al)粉末、ニッケル(Ni)粉末、鉄(Fe)粉末及びクロム(Cr)粉末の中から選択された1種または2種以上を混合した粉末25~80重量%と、平均分子量1,000,000未満の樹脂2~20重量%と、水又は大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤からなる溶媒18~45重量%と、シリカ(SiO₂)粉末、アルミナ(Al₂O₃)粉末、ジルコニア(ZrO₂)粉末或いは酸化チタン(TiO₂)粉末の中から選択された1種又は2種以上を混合した粉末0~10重量%と、を混練して成る導電ペーストを塗布後、単層誘電体の状態または複層誘電体に積層した状態で、露点50℃以下の大気中または露点50℃以下の不活性ガス雰囲気中または露点50℃以下の還元ガス雰囲気中で焼成してなることを特徴とするコンデンサ素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ガラスまたはガラスと磁器(セラミックス)を素材にして製造されるコンデンサ用の誘電体組成物及びそれを材料に用いたガラス誘電体ペーストとコンデンサ素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来より、ガラス誘電体粉末を主成分にしたガラス誘電体ペーストが製造されており、Ag粉末やAg/Pd混合粉末等を主成分に使った導電ペーストとを組み合わせて、主に磁器製基板上にスクリーン印刷法等で塗布後、焼成してコンデンサ素子を形成していた。

【0003】この場合、ガラス誘電体粉末の組成が大気中又は不活性ガス雰囲気中での焼成に対応した設計であるため、主に酸化鉛(PbO)、酸化ビスマス(Bi₂O₃)、酸化錫(SnO₂)、酸化亜鉛(ZnO)、酸化カドミウム(CdO)、酸化ナトリウム(NaO)、硼酸(B₂O₃)、二酸化ケイ素(SiO₂)及びアルカリ土類金属酸化物(MgO、CaO、SrO、BaO)で構成されていた。

【0004】また、ガラス誘電体ペーストには、その機能・特性として高くても1000℃以下で焼成できるものが市場要求として強かったが、その要求を満足するためにはガラスの軟化点を低温度化させるPbO、Bi₂O₃、SnO₂、ZnO、CdOが不可欠であった。

【0005】しかしながら、これらの組成で作られたガラス誘電体ペーストを還元ガス雰囲気中で焼成しようとした場合、PbO、Bi₂O₃、SnO₂、ZnO、CdOは化学量論比よりも酸素が不足する状態になるため、大気中や不活性ガス雰囲気中で焼成したときと同等の誘電体特性が得られなかった。

【0006】更に、コンデンサ素子を形成させる手順に

ついては先ず、基板上に下側電極用の導電ペーストを印刷・焼成して下側電極を形成し、次に下側電極上にガラス誘電体ペーストを印刷・焼成して、誘電体層を形成し、更に上側電極用の導電ペーストを印刷・焼成して上側電極を形成し、最後に上側電極上に被覆用ガラス誘電体ペーストを印刷・焼成するものであり、少なくとも3~4回の焼成を行ってコンデンサ素子を形成していた。

【0007】一方、磁器誘電体粉末(例えばBaTiO₃、MgTiO₃、CaTiO₃、CaZrO₃等)の焼成は従来より盛んに焼結後の誘電体特性改善、即ち、より高い比誘電率と絶縁抵抗及びより少ない誘電損失を得るための改善がなされてきたが、その主な改善手法は、ガラス状組成物も含めた無機微量添加物の配合で焼成時の誘電体粒径や結晶構造制御等に工夫を凝らすことにあった。また、近年では高価な貴金属を電極材料に使い、且つ大気中でしか所望の誘電体特性が得られない磁器誘電体組成物に代わって、Ni等の非金属を電極に使って還元ガス雰囲気中で焼成しても良好な誘電体特性を有するコンデンサ素子が開発されている(例えば、日本国特許第2669184号、2761690号、2762427号、2975459号、3024536号等)。

【0008】しかしながら、これらの磁器誘電体組成物は全て還元ガス雰囲気中或いは低酸素濃度(10PPM以下)雰囲気中で焼成した場合に所望の誘電体特性が得られるものであり、大気(酸化雰囲気)中で焼成した場合には比誘電率や温度特性に変化が現れて所望の特性が得られないため、焼成雰囲気中を問わずに所望の誘電体特性を得られるものがなかった。

【0009】また、これらの磁器誘電体組成物は還元ガス雰囲気中或いは低酸素濃度雰囲気中で約1100~1400℃の高温度下で2~3時間保持して焼成していた。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】従来のガラス誘電体ペーストを使用したコンデンサ素子では次の三点の課題を抱えていた。

【0011】即ち、ガラス誘電体の軟化点が400℃未満であった場合に、ガラス誘電体に混練された樹脂の分解や燃焼が不完全となり、絶縁抵抗値低下や発泡(気孔率の増加)が現れてくる点と、還元ガス雰囲気中の焼成を行おうとした場合では、大気中や不活性ガス雰囲気中の焼成に比べてガラスを構成している耐還元性に劣る成分の一部から酸素が奪われて、化学量論比よりも酸素が欠乏する結果となるため、絶縁抵抗値低下、発泡による変形や強度低下等の不具合が発生する点と、下側電極、誘電体層、上側電極及び被覆用誘電体層を一度で焼成することで焼成回数を減らすことが困難であった点にある。

【0012】一方、磁器誘電体粉末を使用したコンデンサ素子の焼成では約1200~1400℃の高温度下で焼成を必要としていたため、多大なエネルギーを消費するのみならず発熱体や炉体及び匣鉢等保持具の寿命まで

10

20

30

40

50

もが短くなるため、コンデンサ素子を製造する一連の工程の中で焼成工程における製造費用が極めて大きいという課題があった。

【0013】更に、従来の誘電体材料では、その成分や組成設計が大気中焼成及び不活性ガス雰囲気焼成向きか、或いは還元雰囲気焼成向きの何れか好ましい雰囲気中で焼成した場合に所望の誘電体特性が得られるという観点から行われていたため、低気孔率で焼結され、より高い比誘電率と絶縁抵抗及びより少ない誘電損失を有するコンデンサ素子を得るには、自ずと焼成する雰囲気が限定されてしまうという課題も残されていた。

【0014】本発明は、大気中、不活性ガス雰囲気中、還元ガス雰囲気中のいずれの雰囲気下で焼成しても焼成温度400～1000℃の範囲で且つ保持時間30分以内で緻密な焼結構造と誘電体特性を得ることが可能となるガラス誘電体組成物及びガラス誘電体ペーストと、焼成温度1100℃以下で且つ保持時間1時間以内で緻密な焼結構造と誘電体特性を得ることが可能であるガラス・磁器複合型誘電体組成物と、それらを利用した安価なコンデンサ素子を提供することを目的とする。

【0015】

【課題を解決するための手段】本発明は、上記課題を解決するため、

(1) 酸化物換算表示が二酸化ケイ素(SiO_2)で表される原料と、少なくとも酸化物換算表示が、酸化ホウ素(B_2O_3)、酸化リン(P_2O_5)、酸化リチウム(Li_2O)、酸化ナトリウム(Na_2O)、酸化カリウム(K_2O)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、酸化ストロンチウム(SrO)及び酸化バリウム(BaO)で表される一つ以上を原料とし、モル%表示の組成式、 $a\text{SiO}_2 + b\text{B}_2\text{O}_3 + c\text{P}_2\text{O}_5 + d\text{Li}_2\text{O} + e\text{Na}_2\text{O} + f\text{K}_2\text{O} + g\text{MgO} + h\text{CaO} + i\text{SrO} + j\text{BaO}$ で表される $a \sim j$ までの係数が、 $1.8 \leq a \leq 7$ 、 $0.4 \leq b \leq 57.6$ 、 $0 \leq c \leq 52.0$ 、 $0 \leq d \leq 62.56$ 、 $0 \leq e \leq 39.44$ 、 $0 \leq f \leq 68.0$ 、 $0 \leq g \leq 34.0$ 、 $0 \leq h \leq 34.0$ 、 $0 \leq i \leq 34.0$ 、 $0 \leq j \leq 34.0$ を満足する条件で調合してガラス化させたガラス誘電体組成物であり、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率が1モル%未満であることを特徴とするガラス誘電体組成物を提供することにより上記課題を達成する。

【0016】(2)上記(1)に記載のガラス誘電体組成物において、使用する各原料が炭酸化物、水酸化物、塩化物、硫化物、窒化物、フッ化物、硝酸化物、硫酸化物、水化物、有機化合物或いは各原料同士の化合物であって、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率が1モル%未満であることを特徴とするガラス誘電体組成物を提供することにより上記課題を達成する。

【0017】(3)上記(1)または(2)に記載のガラス誘電体組成物を粉末状に粉砕し、その平均粒径が0.5 μm 以上5.0 μm 未満の範囲であり、且つ最大

粒径が100 μm 未満であるガラス誘電体組成物粉末であって、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率が3モル%未満であることを特徴とするガラス誘電体組成物粉末を提供することにより上記課題を達成する。

【0018】(4)上記(3)に記載のガラス誘電体組成物粉末と磁器誘電体粉末とを重量比率で、誘電体組成物粉末：磁器誘電体粉末=0.5：99.5～5.0：95.0で混合した後、露点50℃以下の大気中100℃以下の温度で仮焼して成るガラス／磁器複合型誘電体組成物であって、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率が2モル%未満であることを特徴とするガラス・磁器複合型誘電体組成物を提供することにより上記課題を達成する。

【0019】(5)上記(4)に記載のガラス／磁器複合型誘電体組成物において、前記磁器誘電体粉末は平均粒径10 μm 未満且つ最大粒径200 μm 未満であり、 BaO に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす BaTiO_3 粉末、または SrO に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす SrTiO_3 粉末、または CaO に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす CaTiO_3 粉末、または MgO に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす MgTiO_3 粉末、または CaO に対する ZrO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たす CaTiO_3 粉末、または MgO と CaO の合計に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ MgO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たす $(\text{Mg} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot \text{TiO}_2$ 粉末、または BaO と CaO の合計に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot \text{TiO}_2$ 粉末、または BaO と SrO の合計に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する SrO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Sr})\text{O} \cdot \text{TiO}_2$ 粉末、または BaO と CaO の合計に対する TiO_2 のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する SrO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ BaO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ BaO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Sr} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot \text{TiO}_2$ 粉末、または MgO と CaO の合計に対する TiO_2 と ZrO_2 の合計のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ MgO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ TiO_2 に対する ZrO_2 のモル比が $0.01 \sim 0.3$ を満たす $(\text{Mg} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot (\text{Ti} \cdot \text{Zr})\text{O}_2$ 粉末、または BaO と CaO の合計に対する TiO_2 と ZrO_2 の合計のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ TiO_2 に対する ZrO_2 のモル比が $0.01 \sim 0.3$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot (\text{Ti} \cdot \text{Zr})\text{O}_2$ 粉末、または BaO と SrO と CaO の合計に対する TiO_2 と ZrO_2 の合計のモル比が 1.0 ± 0.1 を満たし且つ BaO に対する SrO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ BaO に対する CaO のモル比が $0.01 \sim 0.2$ を満たし且つ TiO_2 に対する ZrO_2 のモル比が $0.01 \sim 0.3$ を満たす $(\text{Ba} \cdot \text{Sr} \cdot \text{Ca})\text{O} \cdot (\text{Ti} \cdot \text{Zr})\text{O}_2$ 粉末の何れかであることを特徴

とするガラス/磁器複合型誘電体組成物を提供することにより上記課題を達成する。

【0020】(6) 上記(3)に記載のガラス誘電体組成物粉末30～90重量%、平均分子量1,000,000未満の樹脂2～20重量%と水又は大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤8～50重量%とを混練して成ることを特徴とするガラス誘電体ペーストを提供することにより上記課題を達成する。

【0021】(7) また、上記(6)に記載のガラス誘電体ペーストと、銀(Ag)粉末、金(Au)粉末、白金(Pt)粉末、パラジウム(Pd)粉末、銅(Cu)粉末、亜鉛(Zn)粉末、アルミニウム(Al)粉末、ニッケル(Ni)粉末、鉄(Fe)粉末及びクロム(Cr)粉末の中から選択された1種又は2種以上を混合した粉末25～80重量%と、平均分子量1,000,000未満の樹脂2～20重量%と、水又は大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤からなる溶媒18～45重量%と、シリカ(SiO₂)粉末、アルミナ(Al₂O₃)粉末、ジルコニア(ZrO₂)粉末または酸化チタン(TiO₂)粉末の中から選択された1種又は2種以上を混合した粉末0～10重量%と、を混練して成る導電ペーストと、を使用して磁器基板上に塗布後、単層誘電体のまま或いは複層誘電体に塗り重ねた状態で、露点50℃以下の大気中または露点50℃以下の不活性ガス雰囲気中または露点50℃以下の還元ガス雰囲気中で焼成してなるコンデンサ素子を提供することにより上記課題を達成する。

【0022】(8) さらに、上記(5)に記載のガラス/磁器複合型誘電体組成物に平均分子量1,000,000未満の樹脂と大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤を加えて混練したスラリーを板状または筒状またはシート状に成型後、その表面に銀(Ag)粉末、金(Au)粉末、白金(Pt)粉末、パラジウム(Pd)粉末、銅(Cu)粉末、亜鉛(Zn)粉末、アルミニウム(Al)粉末、ニッケル(Ni)粉末、鉄(Fe)粉末及びクロム(Cr)粉末の中から選択された1種または2種以上を混合した粉末25～80重量%と、平均分子量1,000,000未満の樹脂2～20重量%と、水又は大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤からなる溶媒18～45重量%と、シリカ(SiO₂)粉末、アルミナ(Al₂O₃)粉末、ジルコニア(ZrO₂)粉末或いは酸化チタン(TiO₂)粉末の中から選択された1種又は2種以上を混合した粉末0～10重量%と、を混練して成る導電ペーストを塗布後、単層誘電体の状態または複層誘電体に積層した状態で、露点50℃以下の大気中または露点50℃以下の不活性ガス雰囲気中または露点50℃以下の還元ガス雰囲気中で焼成してなることを特徴とするコンデンサ素子を提供することにより、上記課題を達成する。

【0023】

【発明の実施の形態】本発明に係るガラス誘電体組成物、ガラス/磁器複合型誘電体組成物、誘電体ペースト

及びコンデンサ素子の実施の形態について図表に基づいて説明する。

【0024】図1は第1群成分のSiO₂、B₂O₃、P₂O₅の調合比率を示す図である。図2は第2群成分のLi₂O、Na₂O、K₂Oの調合比率を示す図である。図3は第3群成分のMgO、CaO、SrO、BaOの調合比率を示す図である。図4は第1群成分と第2群成分と第3群成分の調合比率を示す図である。図5は本発明に係る平板形コンデンサ素子断面構造図である。図6は本発明に係るガラス/磁器複合型誘電体組成物を用いた円板形コンデンサ素子の断面構造図である。図7は本発明に係る積層形コンデンサ素子の断面構造図である。

【0025】先ず、本発明の実施の形態の例においては前提として、第1群成分として、SiO₂、B₂O₃、P₂O₅を使い、その調合比率を図1に示した点A(SiO₂:B₂O₃:P₂O₅=82:18:0モル%)、点B(SiO₂:B₂O₃:P₂O₅=30:70:0モル%)、点C(SiO₂:B₂O₃:P₂O₅=10:72:18モル%)、点D(SiO₂:B₂O₃:P₂O₅=15:20:65モル%)、点E(SiO₂:B₂O₃:P₂O₅=38:0:62モル%)、点F(SiO₂:B₂O₃:P₂O₅=88:0:12モル%)で囲まれた範囲(但し、点A～点Fは範囲に含む)で調合し、また、第2群成分として、Li₂O、Na₂O、K₂Oを使い、その調合比率を図2に示した点G(Li₂O:Na₂O:K₂O=76:24:0モル%)、点H(Li₂O:Na₂O:K₂O=50:50:0モル%)、点I(Li₂O:Na₂O:K₂O=18:58:24モル%)、点J(Li₂O:Na₂O:K₂O=0:50:50モル%)、点K(Li₂O:Na₂O:K₂O=0:0:100モル%)、点L(Li₂O:Na₂O:K₂O=92:0:8モル%)で囲まれた範囲(但し、点G～点Lは範囲に含む)で調合し、更に、第3群成分として、MgO、CaO、SrO、BaOを使い、その調合比率を図3に示した点M(MgO:CaO:SrO:BaO=0:0:50:50モル%)、点N(MgO:CaO:SrO:BaO=17:0:33:50モル%)、点O(MgO:CaO:SrO:BaO=50:27:0:23モル%)、点P(MgO:CaO:SrO:BaO=50:50:0:0モル%)、点Q(MgO:CaO:SrO:BaO=0:50:50:0モル%)で囲まれた範囲(但し、点M～点Qは範囲に含む)で調合したものを、第1群成分と第2群成分と第3群成分の調合比率を図4に示した点R(主成分:第1副成分:第2副成分=80:20:0重量%)、点S(主成分:第1副成分:第2副成分=42:58:0重量%)、点T(主成分:第1副成分:第2副成分=28:42:30重量%)、点U(主成分:第1副成分:第2副成分=50:5:45重量%)、点V(主成分:第1副成分:第2副成分=80:5:15重量%)で囲まれた範囲(但し、点R～点Vは範囲に含む)で調合した混合物を、大気中1000℃以上で熔解後、急冷させることにより、軟化点が400～960℃であり、調合成分以外の無機不純物の含有量が1モル%以下となるガラス(以下、ガラス誘電体組成物という)を作製する。ここで、図1中の点Aと点Fを結ぶ線よりもSiO₂が多い組成範囲ではガラス誘電体組成物の

軟化点が960℃を越えてしまい、本発明の目的であるガラス誘電体ペーストの焼成温度を1000℃以下、ガラス/磁器複合型誘電体組成物の焼成温度を1100℃以下にすることが困難になるためであり、点Bと点Cと点Dと点Eを結ぶ線よりも B_2O_3 と P_2O_5 が多い組成範囲ではガラス誘電体組成物の軟化点が400℃未満となる場合が多く、ガラス誘電体ペーストの作製やコンデンサ素子の成型時に使われる各種樹脂を焼結前に完全に取り除くことが困難になり、結果として誘電体組成物の諸特性に悪影響を与えるためである。また、低屈折率光学ガラスには利用されているものの、コンデンサ素子用誘電体ペースト成分及び磁器誘電体組成物の添加物として利用実績のない燐酸(P_2O_5)を第1群成分として選択した理由は、ガラスの軟化点を比較的低温に制御することが可能になることと、ガラス化時に発生しやすい失透化現象を防止しやすくなる利点があるためである。

【0026】また、第2群成分を構成する Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O の調合比率を図2中の点G～点Lで囲まれた範囲に限定した理由は、点Gと点Lを結ぶ線よりも Li_2O が多い組成範囲では溶解後の冷却過程で失透化現象が現れ、その結果として軟化点が変動したり、960℃を越えてしまうことがあるためであり、点Hと点Iと点Lを結ぶ線よりも Na_2O が多い組成範囲でも失透化現象が現れやすいためである。

【0027】また、瓶ガラスや板ガラス等には利用されているものの、コンデンサ素子用誘電体ペースト成分及び磁器誘電体用添加物として利用例がない Na_2O や K_2O を第2群成分として選択した理由は、 Li_2O 単体で設計したガラスよりも絶縁抵抗を高められたことと、失透化現象防止効果もあったためである。

【0028】また、第3群成分を構成する MgO 、 CaO 、 SrO 、 BaO の調合比率を図3中の点M～点Qで囲まれた範囲とした理由は、点Nと点Oを結ぶ線よりも MgO が多い組成範囲では溶解後の冷却過程で失透化現象が現れ、その結果として軟化点が変動したり、960℃を越えてしまうことがあるため、発明の対象範囲外とした。

【0029】更に、上記第1群成分、第2群成分及び第3群成分の調合比率を図4中の点R～点Vで囲まれた範囲に限定した理由は、ガラス誘電体組成物の軟化点が400～960℃の範囲にあり、失透化現象や軟化点変動の発生もなく、酸化雰囲気、不活性ガス雰囲気及び還元ガス雰囲気の何れの焼成雰囲気でもガラス誘電体組成物の特性が安定しているためである。

【0030】当該ガラス誘電体組成物を製作する上で使用する原料は酸化物だけでなく、炭酸化物、水酸化物、フッ化物、窒化物、塩化物、硫化物、硝酸化物、硫酸化物、水化物或いは有機化合物のうちで、大気中1000℃以上の高温下で分解し、酸化されるものであれば酸化物を原料に使用した場合と同等の特性を得ることができるため、本発明の原料として使用することができる。

【0031】当該ガラス誘電体組成物中には原料や製作用設備、器具等から調合成分以外の無機質不純物が混入することは避け難いが、溶解直後のガラス誘電体組成物中で1モル%以下の含有率に抑制することで失透化現象や軟化点変動を防止できる。

【0032】次に、ガラス誘電体組成物を磁器製ボールミル等の粉碎設備・器具を使い、微粉碎して平均粒径0.5～5.0 μm で、最大粒径が100 μm に粉碎したガラス誘電体組成物粉末を作製し、平均分子量1,000,000未満の樹脂と水又は大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤に溶解してなる有機ビヒクルとを混練してガラス誘電体ペーストを作製する。

【0033】ここで、平均粒径を0.5～5.0 μm との範囲に限定した理由は、0.5 μm 未満では粉末の比表面積が大きすぎてガラス誘電体ペーストを作製する上で樹脂や溶剤等への均一分散が困難になるためであり、5.0 μm 以上では当該ペースト塗布後の表面が粗くなり、コンデンサ素子成型上、不具合品が発生しやすく、最大粒径100 μm 以上でも不具合品が発生しやすくなるためである。

【0034】また、微粉碎後のガラス誘電体組成物粉末の調合成分以外の無機不純物含有率を3モル%未満にした理由は、粉碎前のガラス誘電体組成物の軟化点に対する許容幅を $\pm 5^\circ C$ にするためである。

【0035】当該ガラス誘電体ペーストと大気中焼成用導電ペースト原料としてAg粉末、Au粉末、Pt粉末或いはPd粉末の中から選択した1種又は2種以上を任意の比率で混合した粉末と平均分子量1,000,000未満の樹脂2～20重量%を水又は大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤18～45重量%を溶媒とした有機ビヒクルと、 SiO_2 粉末、 Al_2O_3 粉末、 ZrO_2 粉末或いは TiO_2 粉末から選択した1種又は2種以上を任意の比率で混合した粉末0～10重量%とを混練して成る導電ペーストを作製し、コンデンサ素子の電極形成用ペーストとした。

【0036】また、不活性ガス雰囲気焼成用導電ペースト原料としてはCu粉末、Zn粉末或いはAl粉末の中から選択した1種又は2種以上を任意の比率で混合した粉末25～85重量%を、還元ガス雰囲気焼成用導電ペースト原料としてNi粉末、Fe粉末或いはCr粉末の中から選択した1種又は2種以上を任意の比率で混合した粉末25～85重量%を、同様に平均分子量1,000,000未満の樹脂2～20重量%を水又は大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤18～45重量%を溶媒とした有機ビヒクルと、 SiO_2 粉末、 Al_2O_3 粉末、 ZrO_2 粉末或いは TiO_2 粉末から選択した1種又は2種以上を任意の比率で混合した粉末0～10重量%とを混練して成る導電ペーストを作製し、コンデンサ素子の電極形成用ペーストとした。

【0037】ここで、導電ペーストに使用した樹脂の平均分子量を1,000,000以下とした理由は溶媒に溶

解しやすく、ガラス誘電体組成物粉末の軟化点以下で分解、燃焼しやすく、塗布作業にも適しているためであり、また大気圧下300℃未満で蒸発する有機溶剤に限定した理由は、ガラス誘電体組成物粉末の軟化が始まる前に完全に蒸発させることが不具合発生防止上好ましいからであり、更に、SiO₂粉末、Al₂O₃粉末、ZrO₂粉末或いはTiO₂粉末を混合した理由としては焼成後のガラス誘電体層をより強固にする効果と基板との熱膨張率差から生じるひび割れ等を防止する効果が得られるためである。

【0038】次に、従来から製造されている円板形、筒形或いは積層形コンデンサ素子を製作するための手段として、大気中、不活性ガス雰囲気中及び還元ガス雰囲気中の何れでも安定した誘電体特性が得られるガラス誘電体組成物粉末と磁器誘電体粉末とをガラス誘電体組成物粉末：磁器誘電体粉末＝0.5：99.5～5.0：95.0（重量％）の比率範囲でボールミル等により混合したものを露点50℃未満の大気中1000℃以下、保持時間1時間以内で仮焼したガラス／磁器複合型誘電体組成物を作る。

【0039】ここで、ガラス／磁器複合型誘電体組成物としても大気中、不活性ガス（窒素ガスまたはアルゴンガス）雰囲気中及び還元ガス（水素混合窒素ガス、一酸化炭素混合窒素ガス、或いは水素・一酸化炭素混合窒素ガス）雰囲気中の何れで焼成しても磁器誘電体の持つ比誘電率、誘電損失及び絶縁抵抗値を損なわないように工夫するため、本発明では特定の組成を有する磁器誘電体粉末を限定した。

【0040】限定した磁器誘電体粉末の種類と組成は請求項5に記載したものである。ガラス誘電体組成物粉末の混合比率を0.5～5.0（重量％）にした理由は、0.5重量％未満の場合にはガラス／磁器複合型組成物の気孔率3％以下の焼結体を1100℃以下の温度で得ることが困難であり、5.0重量％を越えた場合には比誘電率の低下が顕著になるためである。

【0041】また、混合した後に1000℃以下の温度で仮焼するのは、ガラス誘電体粉末を軟化させて、磁器誘電体粉末の表面に均一に固着させ、コンデンサ素子の焼結温度を低下させる効果と焼結密度を向上させやすくする効果を得るためである。

【0042】仮焼は混合したガラス誘電体粉末の軟化点よりも30～50℃高い温度で行うことが好ましい。

【0043】更に、組成物中に含まれる調合成分以外の無機不純物の含有率を2モル％未満にした理由は不純物混入が原因で発生する誘電体特性変化を避けるためであり、磁器誘電体粉末の平均粒径を10μm未満かつ最大

粒径を200μm未満に限定した理由は、ガラス／磁器複合型組成物を1100℃以下で、気孔率3％以下の焼結体を安定して得られると共に焼成前成型体を製作しやすいためである。

【0044】一方、上記ガラス誘電体ペーストを使った本発明のコンデンサ素子を作製する手段は、先ずガラス製又は磁器製基板上に導電ペーストを塗布、乾燥し、続いてガラス誘電体ペーストを塗布、乾燥し、再び同一の導電ペーストを印刷、乾燥し、最後に被覆用として同一のガラス誘電体ペーストを印刷、乾燥後、大気中又は不活性ガス雰囲気中又は還元ガス雰囲気中で脱脂して、何れかの雰囲気下1000℃以下、保持時間30分以内で1回焼成することでコンデンサ素子が得られる。

【0045】また、円板形、筒形のコンデンサ素子を得る場合も、先ずガラス誘電体組成物粉末又はガラス／磁器複合型誘電体組成物に分子量1,000,000未満の樹脂と大気圧下300℃未満で蒸発する溶媒とを混練したものを使い、金型等を使ったプレス成形等による成型を施した後、対向する2面に導電ペーストを塗布、乾燥後、大気中又は不活性ガス雰囲気中又は還元ガス雰囲気中で脱脂し、何れかの雰囲気下で1100℃以下、保持時間1時間以内で同時に焼成してコンデンサ素子が得られる。

【0046】更に、積層形コンデンサの場合は、先ずガラス誘電体組成物粉末又はガラス／磁器複合型誘電体組成物に分子量1,000,000未満の樹脂と大気圧下300℃未満で蒸発する溶媒とを混練して、ドクターブレード法等でシートを成型後、当該シートの片面に導電ペーストをスクリーン印刷法等で印刷、乾燥したものを複数枚積み重ねて加熱圧着したものを大気中又は不活性ガス雰囲気中又は還元ガス雰囲気中で脱脂し、何れかの雰囲気下で1100℃以下、保持時間1時間以内で焼成してコンデンサ素子が得られる。

【0047】以下、本発明者が行った以下の「試作1」～「試作5」について詳述する。

「試作1」下記表1の中からガラス誘電体組成物を製作できる原料として比較的入手が容易なSiO₂粉末（珪砂）、B₂O₃（無水硼酸）及びP₂O₅（無水磷酸）を第1群成分用原料に、Li₂CO₃粉末、Na₂CO₃粉末及びK₂CO₃粉末を第2群成分用原料に、更に、MgCO₃粉末、CaCO₃粉末、SrCO₃粉末及びBaCO₃粉末を第3群成分用原料に選び、下記表2から表9に記した367通り（ガラス誘電体試料番号G001～G367）の組成比率で調合後、攪拌混合機で混合し、混合済原料を製作した。

【0048】

【表1】

断電体ガラス組成物製作に使用可能な原料例

SiO ₂ 原料例	庄砂 天然石英 合成石英	石英ガラス シカゲル H ₄ SiO ₄	H ₂ Si ₂ O ₅ Na ₂ SiO ₃ CaSiO ₃	
B ₂ O ₃ 原料例	B ₂ O ₃ H ₃ BO ₃ H ₂ B ₄ O ₇	ボリ硼酸 LiH ₂ BO ₄ NaH ₂ BO ₃	Na ₂ B ₄ O ₇ ・nH ₂ O Ca ₂ B ₄ O ₇ ・5H ₂ O 硼酸エステル	
P ₂ O ₅ 原料例	P ₂ O ₅ H ₃ PO ₄ H ₄ P ₂ O ₇	ボリ磷酸 LiH ₂ PO ₄ P ₂ N ₆	NaH ₂ PO ₄ Na ₂ H ₂ P ₂ O ₇ K ₂ Na ₂ (P ₄ O ₆)	正磷酸カルボキシエステル メタ磷酸ストリウム ボリ磷酸ヘリウム
Li ₂ O 原料例	Li ₂ CO ₃ LiOH LiCl	LiHS LiF Li ₃ N	LiNO ₃ Li ₂ SO ₄ LiCH ₃ COO	LiC ₂ O ₄
Na ₂ O 原料例	Na ₂ CO ₃ NaOH NaCl	NaHS NaF Na ₃ N	NaNO ₃ Na ₂ SO ₄ Na ₂ CO ₃ ・H ₂ O	NaCH ₃ COO NaC ₂ O ₄
K ₂ O 原料例	K ₂ CO ₃ KOH KCl	KHS KF K ₃ N	KNO ₃ K ₂ SO ₄ KF・2H ₂ O	KCH ₃ COO K ₂ C ₂ O ₄
MgO 原料例	MgCO ₃ Mg(OH) ₂ MgCl ₂	MgS MgF ₂ Mg ₃ N ₂	Mg(NO ₃) ₂ MgSO ₄ MgCl ₂ ・6H ₂ O	Mg(CH ₃ COO) ₂ MgC ₂ O ₄
CaO 原料例	CaCO ₃ Ca(OH) ₂ CaCl ₂	CaS CaF ₂ Ca ₃ N ₂	Ca(NO ₃) ₂ CaSO ₄ CaCl ₂ ・6H ₂ O	Ca(CH ₃ COO) ₂ CaC ₂ O ₄
SrO 原料例	SrCO ₃ Sr(OH) ₂ SrCl ₂	SrS SrF ₂ Sr ₃ N ₂	Sr(NO ₃) ₂ SrSO ₄ BaF ₂	SrSO ₄ ・nH ₂ O Sr(CH ₃ COO) ₂ SrC ₂ O ₄
BaO 原料例	BaCO ₃ Ba(OH) ₂ BaCl ₂	BaS Ba ₃ N ₂ Ba(NO ₃) ₂	BaSO ₄ BaSO ₄ ・nH ₂ O Ba(CH ₃ COO) ₂	BaC ₂ O ₄

【0049】

* * 【表2】

誘電体ガラス組成物調合比率例：その軟化点と不純物含有率(1)

融化物組成 使用原料	第1群成分			第2群成分			第3群成分			第1群 成分比	第2群 成分比	第3群 成分比	軟化点 (℃)	不純物 含有率 (%)	
	SiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Li ₂ O	Na ₂ O	K ₂ O	MgO	CaO	SrO						BaO
	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%						wt%
新電体I'系 試料番号															
G001	45.4	9.5	8.2	16.8	3.2	3.0	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	731	0.3
G002	27.4	6.7	4.9	19.2	13.0	4.8	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	737	0.5
G003	45.4	9.5	8.2	12.9	3.0	7.1	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	738	0.4
G004	27.4	5.7	4.9	12.6	16.3	8.1	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	763	0.5
G005	45.4	9.5	8.2	8.7	3.7	10.6	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	754	0.3
G006	27.4	5.7	4.9	6.3	14.1	16.7	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	773	0.4
G007	45.4	9.5	8.2	3.7	3.9	15.4	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	764	0.3
G008	27.4	5.7	4.9	3.0	2.6	31.5	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	819	0.5
G009	20.9	7.6	9.5	27.0	5.2	4.8	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	702	0.4
G010	34.7	12.6	15.8	12.0	8.1	3.0	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	663	0.4
G011	20.9	7.6	9.5	20.7	4.8	11.6	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	713	0.5
G012	34.7	12.6	15.8	7.8	10.1	5.1	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	678	0.3
G013	20.9	7.6	9.5	14.1	5.9	17.0	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	747	0.3
G014	34.7	12.6	15.8	3.9	8.7	10.4	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	686	0.4
G015	20.9	7.6	9.5	5.9	6.3	24.8	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	755	0.6
G016	34.7	12.6	15.8	1.8	1.6	19.6	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	713	0.3
G017	29.6	23.3	10.1	16.8	3.2	3.0	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	682	0.3
G018	17.9	14.1	6.1	19.2	13.0	4.8	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	695	0.5
G019	29.6	23.3	10.1	12.9	3.0	7.1	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	669	0.4
G020	17.9	14.1	6.1	12.6	16.3	8.1	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	721	0.5
G021	29.6	23.3	10.1	8.7	3.7	10.6	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	685	0.4
G022	17.9	14.1	6.1	6.3	14.1	18.7	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	732	0.5
G023	29.6	23.3	10.1	3.7	3.9	15.4	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	695	0.3
G024	17.9	14.1	6.1	3.0	2.6	31.5	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	794	0.5
G025	15.2	9.5	13.3	27.0	5.2	4.8	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	668	0.6
G026	25.2	15.8	22.1	12.0	8.1	3.0	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	606	0.3
G027	15.2	9.5	13.3	20.7	4.8	11.6	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	679	0.5
G028	25.2	15.8	22.1	7.8	10.1	5.1	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	622	0.3
G029	15.2	9.5	13.3	14.1	5.9	17.0	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	705	0.7
G030	25.2	15.8	22.1	3.9	8.7	10.4	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	629	0.3
G031	15.2	9.5	13.3	5.9	6.3	24.8	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	720	0.6
G032	25.2	15.8	22.1	1.8	1.6	19.6	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	656	0.4
G033	26.5	9.5	27.1	16.8	3.2	3.0	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	598	0.3
G034	16.0	5.7	16.3	19.2	13.0	4.8	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	657	0.6
G035	26.5	9.5	27.1	12.9	3.0	7.1	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	606	0.3
G036	16.0	5.7	16.3	12.6	16.3	8.1	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	690	0.5
G037	26.5	9.5	27.1	8.7	3.7	10.6	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	622	0.3
G038	16.0	5.7	16.3	6.3	14.1	16.7	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	693	0.5
G039	26.5	9.5	27.1	3.7	3.9	15.4	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	632	0.3
G040	16.0	5.7	16.3	3.0	2.6	31.5	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	735	0.5
G041	9.5	22.0	6.5	27.0	5.2	4.8	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	666	0.7
G042	15.8	36.5	10.7	12.0	8.1	3.0	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	602	0.3
G043	9.5	22.0	6.5	20.7	4.8	11.6	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	677	0.5
G044	15.8	36.5	10.7	7.8	10.1	5.1	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	616	0.3
G045	9.5	22.0	6.5	14.1	5.9	17.0	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	703	0.5
G046	15.8	36.5	10.7	3.9	8.7	10.4	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	625	0.4
G047	9.5	22.0	6.5	5.9	6.3	24.8	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	716	0.5
G048	15.8	36.5	10.7	1.8	1.6	19.6	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	653	0.4
G049	16.4	23.3	23.3	16.8	3.2	3.0	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	569	0.3
G050	9.9	14.1	14.1	19.2	13.0	4.8	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	639	0.5
G051	16.4	23.3	23.3	12.9	3.0	7.1	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	577	0.3
G052	9.9	14.1	14.1	12.6	16.3	8.1	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	672	0.5
G053	16.4	23.3	23.3	8.7	3.7	10.6	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	593	0.3
G054	9.9	14.1	14.1	6.3	14.1	16.7	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	676	0.6
G055	16.4	23.3	23.3	3.7	3.9	15.4	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	603	0.3
G056	9.9	14.1	14.1	3.0	2.6	31.5	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	727	0.5
G057	10.6	6.5	20.9	27.0	5.2	4.8	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	627	0.5
G058	17.6	10.7	34.7	12.0	8.1	3.0	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	538	0.3
G059	10.6	6.5	20.9	20.7	4.8	11.6	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	638	0.5
G060	17.6	10.7	34.7	7.8	10.1	5.1	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	583	0.3
G061	10.6	6.5	20.9	14.1	5.9	17.0	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	664	0.6
G062	17.6	10.7	34.7	3.9	8.7	10.4	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	561	0.3
G063	10.6	6.5	20.9	5.9	6.3	24.8	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	679	0.5
G064	17.6	10.7	34.7	1.8	1.6	19.6	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	588	0.4

【0050】

* * 【表3】

誘電体ガラス組成物割合比率例：その軟化点と不純物含有量（Ⅱ）

酸化物組成 使用原料	第1群成分			第2群成分			第3群成分				第1群 成分 割合比	第2群 成分 割合比	第3群 成分 割合比	軟化点 (℃)	不純物 含有率 (%)
	SiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Li ₂ O	Na ₂ O	K ₂ O	MgO	CaO	SrO	BaO					
	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%					
誘電体ガラス 試料番号															
G065	65.6	14.4	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	730	0.3
G066	34.4	7.6	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	592	0.3
G067	23.0	5.0	0.0	7.6	24.4	10.1	15.0	8.1	0.0	6.9	28	42	30	776	0.6
G068	41.0	9.0	0.0	0.0	2.5	2.5	22.5	22.5	0.0	0.0	50	5	45	945	0.8
G069	66.6	14.4	0.0	0.0	0.0	5.0	0.0	7.5	7.5	0.0	80	5	15	960	0.7
G070	51.7	11.3	0.0	21.2	0.0	1.8	0.0	0.0	7.0	7.0	63	23	14	774	0.4
G071	31.2	6.8	0.0	27.0	5.2	4.8	4.3	0.0	8.3	12.5	38	37	25	761	0.3
G072	24.0	56.0	0.0	16.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	564	0.2
G073	12.6	29.4	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	504	0.3
G074	8.4	19.6	0.0	7.6	24.4	10.1	0.0	15.0	15.0	0.0	28	42	30	762	0.6
G075	15.0	35.0	0.0	0.0	2.5	2.5	0.0	0.0	22.5	22.5	50	5	45	874	0.8
G076	24.0	56.0	0.0	0.0	0.0	5.0	2.6	0.0	5.0	7.5	80	5	15	691	0.7
G077	18.9	44.1	0.0	21.2	0.0	1.8	7.0	3.8	0.0	3.2	63	23	14	621	0.3
G078	11.4	26.6	0.0	27.0	5.2	4.8	12.5	12.5	0.0	0.0	38	37	25	674	0.4
G079	8.0	57.6	14.4	16.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	457	0.2
G080	4.2	30.2	7.6	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	448	0.3
G081	2.8	20.2	5.0	7.6	24.4	10.1	5.1	0.0	9.9	15.0	28	42	30	697	0.6
G082	5.0	36.0	9.0	0.0	2.5	2.5	22.5	12.2	0.0	10.4	50	5	45	763	0.8
G083	8.0	67.6	14.4	0.0	0.0	5.0	7.5	7.5	0.0	0.0	80	5	15	579	0.7
G084	6.3	45.4	11.3	21.2	0.0	1.8	0.0	7.0	7.0	0.0	63	23	14	565	0.5
G085	3.8	27.4	6.8	27.0	5.2	4.8	0.0	0.0	12.5	12.5	38	37	25	642	0.4
G086	12.0	16.0	62.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	401	0.2
G087	6.3	8.4	27.3	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	412	0.3
G088	4.2	5.6	18.2	7.6	24.4	10.1	15.0	15.0	0.0	0.0	28	42	30	653	0.6
G089	7.5	10.0	32.5	0.0	2.5	2.5	0.0	22.5	22.5	0.0	50	5	45	769	0.8
G090	12.0	16.0	62.0	0.0	0.0	5.0	0.0	0.0	7.5	7.5	80	5	15	494	0.7
G091	9.5	12.6	41.0	21.2	0.0	1.8	2.4	0.0	4.6	7.0	63	23	14	476	0.5
G092	5.7	7.6	24.7	27.0	5.2	4.8	12.5	6.8	0.0	5.8	38	37	25	571	0.4
G093	30.4	0.0	49.6	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	441	0.2
G094	18.0	0.0	26.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	440	0.3
G095	10.6	0.0	17.4	7.6	24.4	10.1	0.0	0.0	15.0	15.0	28	42	30	704	0.6
G096	19.0	0.0	31.0	0.0	2.5	2.5	7.7	0.0	14.9	22.5	50	5	45	778	0.7
G097	30.4	0.0	49.6	0.0	0.0	5.0	7.5	4.1	0.0	3.5	80	5	15	560	0.7
G098	23.9	0.0	39.1	21.2	0.0	1.8	7.0	7.0	0.0	0.0	63	23	14	535	0.6
G099	14.4	0.0	23.8	27.0	5.2	4.8	0.0	12.5	12.5	0.0	38	37	25	647	0.3
G100	70.4	0.0	9.6	16.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	706	0.3
G101	37.0	0.0	5.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	587	0.2
G102	24.6	0.0	3.4	7.6	24.4	10.1	16.0	8.1	0.0	6.9	28	42	30	772	0.7
G103	44.0	0.0	6.0	0.0	2.5	2.5	22.5	22.5	0.0	0.0	50	5	45	939	0.8
G104	70.4	0.0	9.6	0.0	0.0	5.0	0.0	7.5	7.5	0.0	80	5	15	960	0.7
G105	55.4	0.0	7.6	21.2	0.0	1.8	0.0	0.0	7.0	7.0	63	23	14	766	0.7
G106	33.4	0.0	4.6	27.0	5.2	4.8	4.3	0.0	8.3	12.5	38	37	25	756	0.3
G107	57.6	12.0	10.4	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	667	0.1
G108	30.2	6.3	5.5	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	559	0.2
G109	20.2	4.2	3.6	7.6	24.4	10.1	0.0	15.0	15.0	0.0	28	42	30	798	0.6
G110	36.0	7.5	6.5	0.0	2.5	2.5	0.0	0.0	22.5	22.5	50	5	45	939	0.7
G111	57.5	12.0	10.4	0.0	0.0	5.0	2.6	0.0	5.0	7.5	80	5	15	795	0.7
G112	46.4	9.5	8.2	21.2	0.0	1.8	7.0	3.8	0.0	3.2	63	23	14	710	0.4
G113	27.4	5.7	4.9	27.0	5.2	4.8	12.5	12.5	0.0	0.0	38	37	25	720	0.3

【0051】

* * 【表4】

誘電体ガラス組成物割合比率例：その軟化点と不純物含有量（Ⅲ）

融け物組成 使用原料	第1群成分			第2群成分			第3群成分				第1群 成分 割合比	第2群 成分 割合比	第3群 成分 割合比	軟化点 (℃)	不純物 含有率 wt%
	SiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Li ₂ O	Na ₂ O	K ₂ O	MgO	CaO	SrO	BaO					
	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%					
誘電体ガラス 材料番号															
G114	65.6	14.4	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	730	0.2
G115	34.4	7.6	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	592	0.3
G116	23.0	5.0	0.0	7.6	24.4	10.1	15.0	15.0	0.0	0.0	28	42	30	783	0.7
G117	41.0	9.0	0.0	0.0	2.5	2.5	0.0	22.5	22.5	0.0	50	5	45	1001	0.8
G118	65.6	14.4	0.0	0.0	0.0	5.0	0.0	0.0	7.5	7.5	80	5	15	884	0.7
G119	51.7	11.3	0.0	21.2	0.0	1.8	2.4	0.0	4.6	7.0	63	23	14	768	0.5
G120	31.2	6.8	0.0	19.2	13.0	4.8	12.5	6.8	0.0	5.8	38	37	25	766	0.3
G121	24.0	56.0	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	564	0.2
G122	12.6	29.4	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	504	0.4
G123	8.4	19.6	0.0	7.6	24.4	10.1	0.0	0.0	15.0	15.0	28	42	30	747	0.6
G124	15.0	35.0	0.0	0.0	2.5	2.5	7.7	0.0	14.9	22.5	50	5	45	855	0.8
G125	24.0	56.0	0.0	0.0	0.0	5.0	7.5	4.1	0.0	3.5	80	5	15	683	0.7
G126	18.9	44.1	0.0	21.2	0.0	1.8	7.0	7.0	0.0	0.0	63	23	14	624	0.3
G127	11.4	26.6	0.0	19.2	13.0	4.8	0.0	12.5	12.5	0.0	38	37	25	713	0.5
G128	8.0	57.6	14.4	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	457	0.2
G129	4.2	30.2	7.6	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	448	0.2
G130	7.8	20.2	5.0	7.6	24.4	10.1	15.0	8.1	0.0	6.9	28	42	30	680	0.8
G131	5.0	36.0	9.0	0.0	2.5	2.5	22.5	22.5	0.0	0.0	50	5	45	774	0.8
G132	8.0	57.6	14.4	0.0	0.0	5.0	0.0	7.5	7.5	0.0	80	5	15	598	0.8
G133	6.3	45.4	11.3	21.2	0.0	1.8	0.0	0.0	7.0	7.0	63	23	14	658	0.4
G134	3.8	27.4	6.8	19.2	13.0	4.8	4.3	0.0	8.3	12.6	38	37	25	639	0.4
G135	12.0	16.0	52.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	403	0.2
G136	6.3	8.4	27.3	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	415	0.3
G137	4.2	5.6	18.2	7.6	24.4	10.1	0.0	15.0	15.0	0.0	28	42	30	705	0.6
G138	7.5	10.0	32.5	0.0	2.5	2.5	0.0	0.0	22.5	22.5	50	5	45	747	0.8
G139	12.0	16.0	52.0	0.0	0.0	5.0	2.6	0.0	5.0	7.5	80	5	15	487	0.7
G140	9.5	12.6	41.0	21.2	0.0	1.8	7.0	3.8	0.0	3.2	63	23	14	468	0.5
G141	5.7	7.8	24.7	19.2	13.0	4.8	12.5	12.5	0.0	0.0	38	37	25	585	0.4
G142	30.4	0.0	49.6	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	441	0.2
G143	16.0	0.0	26.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	440	0.3
G144	10.6	0.0	17.4	7.6	24.4	10.1	5.1	0.0	9.9	15.0	28	42	30	691	0.8
G145	19.0	0.0	31.0	0.0	2.5	2.5	22.5	12.2	0.0	10.4	50	5	45	753	0.7
G146	30.4	0.0	49.6	0.0	0.0	5.0	7.5	7.5	0.0	0.0	80	5	15	563	0.7
G147	23.9	0.0	39.1	21.2	0.0	1.8	0.0	7.0	7.0	0.0	63	23	14	553	0.6
G148	14.4	0.0	23.6	19.2	13.0	4.8	0.0	0.0	12.5	12.5	38	37	25	642	0.3
G149	70.4	0.0	9.6	16.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	706	0.3
G150	37.0	0.0	5.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	587	0.2
G151	24.6	0.0	3.4	7.6	24.4	10.1	15.0	15.0	0.0	0.0	28	42	30	779	0.7
G152	44.0	0.0	6.0	0.0	2.5	2.5	0.0	22.5	22.5	0.0	50	5	45	995	0.8
G153	70.4	0.0	9.6	0.0	0.0	5.0	0.0	0.0	7.5	7.5	80	5	15	855	0.7
G154	55.4	0.0	7.6	21.2	0.0	1.8	2.4	0.0	4.6	7.0	63	23	14	760	0.5
G155	33.4	0.0	4.6	19.2	13.0	4.8	12.5	6.8	0.0	5.8	38	37	25	750	0.4
G156	44.0	16.0	20.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	584	0.2
G157	23.1	8.4	10.5	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	515	0.3
G158	15.4	5.6	7.0	7.6	24.4	10.1	0.0	0.0	15.0	15.0	28	42	30	754	0.5
G159	27.5	10.0	12.5	0.0	2.5	2.5	7.7	0.0	14.9	22.5	50	5	45	868	0.8
G160	44.0	16.0	20.0	0.0	0.0	5.0	7.5	4.1	0.0	3.5	80	5	15	703	0.7
G161	34.7	12.6	15.8	21.2	0.0	1.8	7.0	7.0	0.0	0.0	63	23	14	648	0.5
G162	20.9	7.6	9.5	19.2	13.0	4.8	0.0	12.5	12.5	0.0	38	37	25	722	0.4

【0052】

* * 【表5】

誘電体ガラス組成物割合比率例：その軟化点と不純物含有量 (IV)

酸化物組成 使用原料	第1群成分			第2群成分			第3群成分					第1群 成分 割合比	第2群 成分 割合比	第3群 成分 割合比	軟化点 (℃)	不純物 含有率 (%)
	SiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Li ₂ O	Na ₂ O	K ₂ O	MgO	CaO	SrO	BaO						
	SiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Li ₂ CO ₃	Na ₂ CO ₃	K ₂ CO ₃	MgCO ₃	CaCO ₃	SrCO ₃	BaCO ₃						
試料番号	10%	10%	10%	10%	10%	10%	10%	10%	10%	10%	割合比	割合比	割合比	(℃)	(%)	
G163	65.6	14.4	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	40	20	0	730	0.2	
G164	34.4	7.6	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	82	58	0	592	0.4	
G165	23.0	5.0	0.0	7.6	24.4	10.1	0.0	15.0	16.0	0.0	28	42	30	820	0.8	
G166	41.0	9.0	0.0	0.0	2.6	2.5	0.0	0.0	22.5	22.5	50	5	45	978	0.8	
G167	65.6	14.4	0.0	0.0	0.0	5.0	2.6	0.0	5.0	7.5	80	5	15	858	0.7	
G168	51.7	11.3	0.0	21.2	0.0	1.8	7.0	3.8	0.0	3.2	63	23	14	760	0.3	
G169	31.2	6.8	0.0	20.7	4.8	11.5	12.5	12.5	0.0	0.0	38	37	25	772	0.5	
G170	24.0	58.0	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	564	0.2	
G171	12.6	29.4	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	504	0.2	
G172	8.4	19.6	0.0	7.6	24.4	10.1	5.1	0.0	9.9	15.0	28	42	30	734	0.8	
G173	15.0	35.0	0.0	0.0	2.5	2.5	22.5	12.2	0.0	10.4	50	5	45	830	0.7	
G174	24.0	56.0	0.0	0.0	0.0	5.0	7.5	7.5	0.0	0.0	80	5	15	687	0.8	
G175	18.9	44.1	0.0	21.2	0.0	1.8	0.0	7.0	7.0	0.0	63	23	14	649	0.4	
G176	11.4	25.6	0.0	20.7	4.8	11.5	0.0	0.0	12.5	12.5	38	37	25	712	0.5	
G177	8.0	57.6	14.4	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	457	0.2	
G178	4.2	30.2	7.6	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	448	0.3	
G179	2.8	20.2	5.0	7.6	24.4	10.1	15.0	15.0	0.0	0.0	28	42	30	687	0.8	
G180	5.0	36.0	9.0	0.0	2.5	2.5	0.0	22.5	22.5	0.0	50	5	45	830	0.8	
G181	8.0	67.6	14.4	0.0	0.0	5.0	0.0	0.0	7.5	7.5	80	5	15	591	0.8	
G182	6.3	45.4	11.3	21.2	0.0	1.8	2.4	0.0	4.6	7.0	63	23	14	552	0.4	
G183	3.8	27.4	6.8	20.7	4.8	11.5	12.5	6.8	0.0	5.8	38	37	25	637	0.4	
G184	12.0	16.0	52.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	406	0.2	
G185	6.3	8.4	27.3	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	415	0.3	
G186	4.2	5.6	18.2	7.6	24.4	10.1	0.0	0.0	15.0	15.0	28	42	30	675	0.8	
G187	7.5	10.0	32.5	0.0	2.5	2.5	7.7	0.0	14.9	22.5	50	5	45	728	0.8	
G188	12.0	16.0	52.0	0.0	0.0	5.0	7.5	4.1	0.0	3.5	80	5	15	479	0.7	
G189	9.5	12.6	41.0	21.2	0.0	1.8	7.0	7.0	0.0	0.0	63	23	14	464	0.5	
G190	5.7	7.6	24.7	20.7	4.8	11.5	0.0	12.5	12.5	0.0	38	37	25	628	0.4	
G191	30.4	0.0	49.6	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	441	0.2	
G192	16.0	0.0	26.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	440	0.3	
G193	10.6	0.0	17.4	7.6	24.4	10.1	15.0	8.1	0.0	6.9	28	42	30	674	0.8	
G194	19.0	0.0	31.0	0.0	2.5	2.5	22.5	22.5	0.0	0.0	50	5	45	764	0.8	
G195	30.4	0.0	49.6	0.0	0.0	5.0	0.0	7.5	7.5	0.0	80	5	15	582	0.7	
G196	23.9	0.0	39.1	21.2	0.0	1.8	0.0	0.0	7.0	7.0	63	23	14	546	0.4	
G197	14.4	0.0	23.6	20.7	4.8	11.5	4.3	0.0	8.3	12.5	38	37	25	643	0.4	
G198	70.4	0.0	9.6	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	721	0.2	
G199	37.0	0.0	5.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	587	0.3	
G200	24.6	0.0	3.4	7.6	24.4	10.1	0.0	15.0	15.0	0.0	28	42	30	817	0.6	
G201	44.0	0.0	0.0	0.0	2.5	2.5	0.0	0.0	22.5	22.5	50	5	45	972	0.6	
G202	70.4	0.0	9.6	0.0	0.0	5.0	2.6	0.0	5.0	7.5	80	5	15	848	0.8	
G203	55.4	0.0	7.6	21.2	0.0	1.8	7.0	3.8	0.0	3.2	63	23	14	744	0.4	
G204	33.4	0.0	4.6	20.7	4.8	11.5	12.5	12.5	0.0	0.0	38	37	25	768	0.4	
G205	37.6	29.6	12.8	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	580	0.2	
G206	19.7	15.5	6.7	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	513	0.3	
G207	13.2	10.4	4.5	7.6	24.4	10.1	5.1	0.0	9.9	15.0	28	42	30	740	0.6	
G208	23.5	18.5	8.0	0.0	2.5	2.5	22.5	12.2	0.0	10.4	50	5	45	840	0.8	
G209	37.6	29.6	12.8	0.0	0.0	5.0	7.5	7.5	0.0	0.0	80	5	15	703	0.7	
G210	29.6	23.3	10.1	21.2	0.0	1.8	0.0	7.0	7.0	0.0	63	23	14	662	0.3	
G211	17.9	14.1	6.1	20.7	4.8	11.5	0.0	0.0	12.5	12.5	38	37	25	720	0.5	

【0053】

* * 【表6】

誘電体ガラス組成物割合比率例：その軟化点と不純物含有量 (V)

融化物組成 使用原料	第1群成分			第2群成分			第3群成分				第1群 成分 割合	第2群 成分 割合	第3群 成分 割合	軟化点 (℃)	不純物 含有率 %
	SiO ₂ %	B ₂ O ₃ %	P ₂ O ₅ %	Li ₂ O %	Na ₂ O %	K ₂ O %	MgO %	CaO %	SrO %	BaO %					
誘電体ガラス 材料番号															
G212	66.6	14.4	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	730	0.2
G213	34.4	7.6	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	592	0.4
G214	23.0	5.0	0.0	7.6	24.4	10.1	8.4	10.8	6.6	4.2	28	42	30	795	0.6
G215	41.0	9.0	0.0	0.0	2.5	2.5	5.4	13.5	17.1	9.0	50	5	45	976	0.6
G216	66.6	14.4	0.0	0.0	0.0	5.0	1.5	3.8	6.0	3.8	80	5	15	864	0.7
G217	51.7	11.3	0.0	21.2	0.0	1.8	3.6	1.7	3.4	5.5	63	23	14	767	0.3
G218	31.2	6.8	0.0	12.6	16.3	8.1	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	793	0.5
G219	24.0	56.0	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	564	0.2
G220	12.6	29.4	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	504	0.2
G221	8.4	19.6	0.0	7.6	24.4	10.1	3.6	9.0	11.4	6.0	28	42	30	747	0.6
G222	15.0	35.0	0.0	0.0	2.5	2.5	4.5	11.3	18.0	11.3	50	5	45	874	0.6
G223	24.0	56.0	0.0	0.0	0.0	5.0	3.8	1.8	3.6	5.9	80	5	15	690	0.7
G224	18.9	44.1	0.0	21.2	0.0	1.8	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	640	0.5
G225	11.4	26.6	0.0	12.6	16.3	8.1	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	701	0.4
G226	8.0	57.6	14.4	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	457	0.2
G227	4.2	30.2	7.6	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	448	0.3
G228	2.8	20.2	5.0	7.6	24.4	10.1	3.0	7.5	12.0	7.5	28	42	30	709	0.6
G229	5.0	36.0	9.0	0.0	2.5	2.5	11.3	5.4	10.8	17.6	50	5	45	784	0.6
G230	8.0	57.6	14.4	0.0	0.0	5.0	1.5	3.8	6.0	3.8	80	5	15	591	0.7
G231	6.3	45.4	11.3	21.2	0.0	1.8	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	551	0.4
G232	3.8	27.4	6.8	12.6	16.3	8.1	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	654	0.4
G233	12.0	16.0	52.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	404	0.2
G234	6.3	8.4	27.3	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	410	0.3
G235	4.2	5.6	18.2	7.6	24.4	10.1	7.5	3.6	7.2	11.7	28	42	30	660	0.6
G236	7.5	10.0	32.5	0.0	2.5	2.5	4.5	11.3	18.0	11.3	50	5	45	747	0.6
G237	12.0	16.0	52.0	0.0	0.0	5.0	3.8	1.8	3.6	5.9	80	5	15	486	0.6
G238	9.5	12.6	41.0	21.2	0.0	1.8	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	472	0.4
G239	5.7	7.6	24.7	12.6	16.3	8.1	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	617	0.4
G240	30.4	0.0	49.6	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	426	0.2
G241	16.0	0.0	26.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	440	0.3
G242	10.6	0.0	17.4	7.6	24.4	10.1	3.0	7.5	12.0	7.5	28	42	30	704	0.6
G243	19.0	0.0	31.0	0.0	2.5	2.5	11.3	5.4	10.8	17.6	50	5	45	774	0.7
G244	30.4	0.0	49.6	0.0	0.0	5.0	4.2	5.4	3.3	2.1	80	5	15	570	0.6
G245	23.9	0.0	39.1	21.2	0.0	1.8	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	546	0.4
G246	14.4	0.0	23.6	12.6	16.3	8.1	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	655	0.4
G247	70.4	0.0	9.6	16.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	721	0.2
G248	37.0	0.0	5.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	587	0.3
G249	24.6	0.0	3.4	7.6	24.4	10.1	7.5	3.6	7.2	11.7	28	42	30	786	0.6
G250	44.0	0.0	6.0	0.0	2.5	2.5	12.8	16.2	9.9	6.3	50	5	45	957	0.7
G251	70.4	0.0	9.6	0.0	0.0	5.0	1.8	4.5	5.7	3.0	80	5	15	856	0.6
G252	55.4	0.0	7.6	21.2	0.0	1.8	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	764	0.4
G253	33.4	0.0	4.6	12.6	16.3	8.1	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	775	0.5
G254	32.0	20.0	28.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	512	0.2
G255	16.8	10.5	14.7	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	477	0.3
G256	11.2	7.0	9.8	7.6	24.4	10.1	8.4	10.8	6.6	4.2	28	42	30	725	0.6
G257	20.0	12.5	17.5	0.0	2.5	2.5	5.4	13.5	17.1	9.0	50	5	45	842	0.6
G258	32.0	20.0	28.0	0.0	0.0	5.0	1.5	3.8	6.0	3.8	80	5	15	646	0.7
G259	25.2	15.8	22.1	21.2	0.0	1.8	3.5	1.7	3.4	5.5	63	23	14	585	0.3
G260	15.2	9.5	13.3	12.6	16.3	8.1	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	689	0.5

【0054】

* * 【表7】

誘電体ガラス組成物配合比率例：その軟化点と不純物含有量 (VI)

融化物組成 使用原料	第1群成分			第2群成分			第3群成分			第1群 成分 割合	第2群 成分 割合	第3群 成分 割合	軟化点 (°C)	不純物 含有率 (%)	備 考
	SiO ₂ wt%	B ₂ O ₃ wt%	P ₂ O ₅ wt%	Li ₂ O wt%	Na ₂ O wt%	K ₂ O wt%	MgO wt%	CaO wt%	SrO wt%	BaO wt%					
誘電体ガラス 原料重量比															
* G296	87.2	12.8	0.0	18.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	718	0.2
* G297	35.3	6.7	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	583	0.3
* G298	23.5	4.5	0.0	7.6	24.4	10.1	3.6	9.0	11.4	6.0	28	42	30	820-920	0.6
* G299	42.0	8.0	0.0	0.0	2.5	2.5	0.0	0.0	22.5	22.5	50	5	45	1014	0.6
* G300	67.2	12.8	0.0	0.0	0.0	5.0	2.6	0.0	5.0	7.5	80	5	15	859	0.7
* G301	62.9	10.1	0.0	21.2	0.0	1.8	7.0	3.8	0.0	3.2	63	23	14	757	0.4
* G302	31.9	6.1	0.0	14.1	5.9	17.0	12.5	12.5	0.0	0.0	38	37	25	800-900	0.4
* G303	22.4	57.6	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	494	0.2
* G304	11.8	30.2	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	465	0.4
* G305	7.8	20.2	0.0	7.6	24.4	10.1	7.5	3.6	7.2	11.7	28	42	30	730-830	0.2
* G306	14.0	36.0	0.0	0.0	2.5	2.5	12.6	16.2	9.9	6.3	60	5	45	900以上	0.3
* G307	22.4	57.6	0.0	0.0	0.0	5.0	1.8	4.5	5.7	3.0	80	5	15	642	0.7
* G308	17.6	46.4	0.0	21.2	0.0	1.8	0.0	0.0	7.0	7.0	63	23	14	601	0.4
* G309	10.6	27.4	0.0	14.1	5.9	17.0	4.3	0.0	8.3	12.6	38	37	25	710-810	0.4
* G310	6.4	60.8	12.8	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	376	0.2
* G311	3.4	31.9	6.7	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	403	0.6
* G312	2.2	21.3	4.5	7.8	24.4	10.1	0.0	15.0	15.0	0.0	28	42	30	720-820	0.7
* G313	4.0	38.0	8.0	0.0	2.5	2.5	4.5	11.3	18.0	11.3	60	5	45	960以上	0.6
* G314	6.4	60.8	12.8	0.0	0.0	5.0	3.8	1.8	3.6	5.9	80	5	15	514	0.7
* G315	5.0	47.9	10.1	21.2	0.0	1.8	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	499	0.4
* G316	3.0	28.9	6.1	14.1	5.9	17.0	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	660-760	0.4
* G317	11.2	14.4	54.4	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	275	0.4
* G318	5.9	7.6	28.6	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	360	0.4
* G319	3.9	6.0	19.0	7.8	24.4	10.1	18.0	8.1	0.0	6.9	28	42	30	630-730	0.2
* G320	7.0	9.0	34.0	0.0	2.5	2.5	22.5	22.5	0.0	0.0	60	5	45	960以上	0.3
* G321	11.2	14.4	54.4	0.0	0.0	5.0	0.0	7.5	7.5	0.0	80	5	15	432	0.6
* G322	8.8	11.3	42.8	21.2	0.0	1.8	1.4	3.5	5.6	3.5	63	23	14	427	0.4
* G323	5.3	6.8	25.8	14.1	5.9	17.0	6.3	3.0	6.0	9.8	38	37	25	600-700	0.4
* G324	28.8	0.0	51.2	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	373	0.2
* G325	15.1	0.0	26.9	29.0	29.0	0.0	0.0	8.0	0.0	0.0	42	58	0	402	0.5
* G326	10.1	0.0	17.9	7.6	24.4	10.1	0.0	0.0	15.0	15.0	28	42	30	710-810	0.7
* G327	18.0	0.0	32.0	0.0	2.5	2.5	7.7	0.0	14.9	22.5	50	5	45	960以上	0.6
* G328	28.8	0.0	51.2	0.0	0.0	5.0	7.5	4.1	0.0	3.5	80	5	15	500	0.6
* G329	22.7	0.0	40.3	21.2	0.0	1.8	7.0	0.0	0.0	0.0	63	23	14	488	0.4
* G330	13.7	0.0	24.3	14.1	5.9	17.0	0.0	12.5	12.5	0.0	38	37	25	670-770	0.4
* G331	72.0	0.0	8.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	718	0.3
* G332	37.8	0.0	4.2	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	583	0.4
* G333	25.2	0.0	2.8	7.6	24.4	10.1	8.4	10.8	6.6	4.2	28	42	30	810-910	0.5
* G334	45.0	0.0	5.0	0.0	2.5	2.5	5.4	13.5	17.1	9.0	50	5	45	1009	0.2
* G335	72.0	0.0	8.0	0.0	0.0	5.0	0.0	0.0	7.5	7.5	80	5	15	887	0.3
* G336	56.7	0.0	6.3	21.2	0.0	1.8	2.4	0.0	4.6	7.0	63	23	14	769	0.4
* G337	34.2	0.0	3.8	14.1	5.9	17.0	12.5	6.8	0.0	5.8	38	37	25	790-890	0.5

*印は本発明範囲外のものを示す。

誘電体ガラス組成物割合比率例：その軟化点と不純物含有率（％）

軟化物組成 使用原料	第1群成分			第2群成分			第3群成分			第1群 成分 割合	第2群 成分 割合	第3群 成分 割合	軟化点 (℃)	不純物 含有率 %	備 考	
	SiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Li ₂ O	Na ₂ O	K ₂ O	MgO	CaO	SrO							BaO
	%	%	%	%	%	%	%	%	%							%
試料番号																
* G338	66.9	13.1	0.0	14.0	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	82	18	0	726	0.3	成分割合
* G339	33.6	6.4	0.0	28.8	31.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	40	60	0	580-680	0.6	失透化
* G340	22.7	4.3	0.0	8.4	24.0	9.6	16.5	8.9	0.0	7.6	27	40	33	960以上	0.5	失透化調整
* G341	40.3	7.7	0.0	0.0	1.6	1.4	24.6	0.0	0.0	0.0	48	3	49	977	0.7	失透化調整
* G342	68.9	13.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	9.0	9.0	0.0	82	0	18	898	0.2	成分割合
* G343	23.0	59.0	0.0	14.0	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	82	18	0	496	0.4	成分割合
* G344	11.2	28.8	0.0	28.8	31.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	40	60	0	478-570	0.5	失透化
* G345	7.6	19.4	0.0	6.4	24.0	9.6	9.2	11.9	7.3	4.6	27	40	33	960以上	0.6	失透化調整
* G346	13.4	34.6	0.0	0.0	1.6	1.4	5.9	14.7	18.5	9.8	48	3	49	960以上	0.5	失透化調整
* G347	23.0	59.0	0.0	0.0	0.0	0.0	3.4	0.0	5.6	9.0	82	0	18	647	0.6	成分割合
* G348	6.6	62.3	13.1	14.0	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	82	18	0	375	0.4	低軟化点
* G349	3.2	30.4	6.4	28.8	31.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	40	60	0	410-510	0.4	失透化
* G350	2.2	20.5	4.3	4.4	24.0	9.6	5.6	0.0	16.5	16.5	27	40	33	960以上	0.6	失透化調整
* G351	3.8	36.5	7.7	0.0	1.6	1.4	24.6	13.2	0.0	11.3	48	3	49	960以上	0.7	失透化調整
* G352	6.6	62.3	13.1	0.0	0.0	0.0	9.0	9.0	0.0	0.0	82	0	18	515	0.2	成分割合
* G353	11.5	14.8	65.8	14.0	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	82	18	0	272	0.3	低軟化点
* G354	5.6	7.2	27.2	28.8	31.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	40	60	0	355	0.6	低軟化点
* G355	3.8	4.9	18.4	6.4	24.0	9.6	8.3	4.0	7.9	12.9	27	40	33	960以上	0.7	失透化調整
* G356	6.7	6.6	32.6	0.0	1.6	1.4	13.7	17.6	10.8	6.9	48	3	49	960以上	0.6	失透化調整
* G357	11.5	14.8	65.8	0.0	0.0	0.0	2.2	6.4	6.8	3.6	82	0	18	432	0.4	成分割合
* G358	29.6	0.0	52.6	14.0	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	82	18	0	372	0.4	低軟化点
* G359	14.4	0.0	26.6	28.8	31.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	40	60	0	410-510	0.2	失透化
* G360	9.7	0.0	17.3	6.4	24.0	9.6	0.0	0.0	16.5	16.5	27	40	33	960以上	0.8	失透化調整
* G361	17.3	0.0	30.7	0.0	1.6	1.4	8.3	0.0	16.2	24.5	48	3	49	960以上	0.4	失透化調整
* G362	29.5	0.0	52.5	0.0	0.0	0.0	0.0	4.9	0.0	4.1	82	0	18	508	0.4	成分割合
* G363	73.8	0.0	8.2	14.0	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	82	18	0	726	0.4	成分割合
* G364	36.0	0.0	4.0	28.8	31.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	40	60	0	580-680	0.3	失透化
* G365	24.3	0.0	2.7	6.4	24.0	9.6	3.3	8.3	13.2	8.3	27	40	33	960以上	0.7	失透化調整
* G366	43.2	0.0	4.8	0.0	1.6	1.4	12.3	5.9	11.8	19.1	48	3	49	960以上	0.6	失透化調整
* G367	73.8	0.0	8.2	0.0	0.0	0.0	5.0	6.5	4.0	2.5	82	0	18	877	0.4	成分割合

*印は本発明範囲外のものを示す。

【0057】以下に367通りのガラス誘電体組成物を得るまでの手順(イ)～(チ)及び条件を示す。

(イ) 当該混合済み原料500gを容積600mlの白金製坩堝に充填した。

(ロ) 原料を充填した白金製坩堝をガラス熔解炉内に入れ、毎時300℃の昇温速度で900℃まで昇温後、更に毎時100℃のゆっくりした昇温速度で1100℃まで昇温し、1時間保持して、原料(炭酸化合物)から発生する炭酸ガスを追い出し、白金製蓋を取り付けた。

(ハ) 引き続き、毎時300℃の昇温速度で1300℃まで昇温し、1時間保持して各原料を完全に熔融させた。

(ニ) 更に、均質組成物を得る目的で1300℃保持終了直前に熔融物を白金製棒で1分間の攪拌混合を行った。

(ホ) 保持時間終了時点で、ガラス熔解炉から白金製坩堝を取り出し、予め準備しておいた冷水中に熔融物を速やかに流し出し、ガラス誘電体組成物を得た。

(ヘ) 367通りのガラス誘電体組成物から各々小片を抜き取り、光学顕微鏡で失透物、成分偏析の有無の確認及び軟化点の測定を行った。

(ト) 次にガラス誘電体組成物を磁器製ポット形容器(組成：アルミナ含有率85%以上)と磁器製ボール(ジルコニア含有率95%以上)から構成されているボ*

*ールミルを使い、ガラス誘電体組成物200gに対してエタノール200gを入れて24時間連続で微粉砕した。

(チ) 微粉砕後、磁器製ポット形容器から被粉砕物を取り出し、温度約100℃に設定した加熱器でエタノール分を蒸発乾燥させて縦横隙間間隔70μmのステンレス製篩を通過させて100μm以上の粗粒子を除去し、ガラス誘電体組成物粉末を得た。なお、各々のガラス誘電体組成物粉末の平均粒径は空気透過式粒度測定器を使用して測定し、軟化点は示差熱分析計を使用して測定し、不純物含有率は蛍光X線分析装置を使用して測定した。

〔試作2〕表1の中から比較的容易にガラス誘電体組成物を製作できるH₂Si₂O₅、LiH₂BO₄、及びH₃PO₄を第1群成分用原料に、LiNO₃、NaF及びK₂C₂O₄を第2群成分用原料に、更にMgCl₂・6H₂O、Ca(CH₃COO)₂、SrS及びBa(OH)₂を第3群成分用原料に選び、下記表10に記した49通り(試料番号G368～G416)の組成比率で調合、攪拌混合機で混合した混合済原料を製作した。

【0058】以降、ガラス誘電体組成物粉末を得るまでの手順及び条件は、前記〔試作1〕と同一であり、当該粉末の粒度分布、軟化点及び不純物含有率の測定方法や条件も同一とした。

【0059】

【表10】

誘電体ガラス組成物調合比率例：その軟化点と不純物含有量 (X)

調電体ガラス 組成物調合 使用原料	第1群成分				第2群成分				第3群成分				第1群 成分 割合	第2群 成分 割合	第3群 成分 割合	軟化点 (℃)	不純物 含有率 (%)
	SiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Li ₂ O	Na ₂ O	K ₂ O	MgO	CaO	SiO ₂	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	Li ₂ O					
調電体ガラス 試料番号	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%	重量%
G368	65.6	14.4	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	730	0.3
G369	34.4	7.6	0.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	592	0.4
G370	23.0	5.0	0.0	7.6	24.4	10.1	8.4	10.8	6.6	4.2	28	42	30	795	0.2		
G371	41.0	9.0	0.0	0.0	2.5	2.5	6.4	13.5	17.1	9.0	50	5	45	960	0.3		
G372	65.6	14.4	0.0	0.0	0.0	5.0	0.0	0.0	7.5	7.5	80	5	15	864	0.6		
G373	51.7	11.3	0.0	21.2	0.0	1.8	2.4	0.0	4.6	7.0	63	23	14	768	0.4		
G374	31.2	6.8	0.0	9.3	21.5	6.3	12.5	6.8	0.0	5.8	38	37	25	768	0.3		
G375	24.0	66.0	0.0	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	564	0.2		
G376	12.6	29.4	0.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	804	0.3		
G377	8.4	19.6	0.0	7.6	21.4	10.1	3.0	7.5	12.0	7.5	28	42	30	747	0.6		
G378	15.0	35.0	0.0	0.0	2.6	2.5	11.3	5.4	10.8	17.0	50	5	45	851	0.8		
G379	24.0	56.0	0.0	0.0	0.0	5.0	4.2	5.4	3.3	2.1	80	6	16	639	0.7		
G380	18.9	44.1	0.0	21.2	0.0	1.8	1.7	4.2	5.3	2.8	63	23	14	843	0.8		
G381	11.4	26.6	0.0	9.6	13.7	13.7	0.0	0.0	12.5	12.5	38	37	25	728	0.7		
G382	8.0	57.6	0.0	14.4	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	457	0.3		
G383	4.2	30.2	7.6	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	448	0.3		
G384	2.8	20.2	5.0	7.6	24.4	10.1	15.0	15.0	0.0	0.0	28	42	30	687	0.6		
G385	5.0	38.0	9.0	0.0	2.5	2.5	0.0	22.5	22.5	0.0	50	5	45	830	0.8		
G386	8.0	57.6	14.4	0.0	0.0	6.0	1.5	3.8	6.0	3.8	80	5	15	591	0.7		
G387	6.3	45.4	11.3	21.2	0.0	1.8	3.5	1.7	3.4	6.6	63	23	14	551	0.5		
G388	3.8	27.4	6.8	10.4	6.3	20.4	7.0	9.0	5.5	3.5	38	37	25	681	0.4		
G389	12.0	16.0	52.0	16.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	402	0.2		
G390	6.3	8.4	27.3	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	410	0.3		
G391	4.2	5.6	18.2	7.6	24.4	10.1	5.1	0.0	9.9	15.0	29	42	30	663	0.6		
G392	7.5	10.0	32.5	0.0	2.5	2.5	22.5	12.2	0.0	10.4	50	5	45	703	0.6		
G393	12.0	16.0	52.0	0.0	0.0	5.0	7.5	7.5	0.0	0.0	80	5	15	483	0.7		
G394	9.5	12.6	41.0	21.2	0.0	1.8	0.0	7.0	7.0	0.0	63	23	14	489	0.6		
G395	5.7	7.6	24.7	27.0	5.2	4.8	2.5	6.3	10.0	6.3	38	37	25	596	0.3		
G396	30.4	0.0	49.6	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	441	0.3		
G397	16.0	0.0	26.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	440	0.2		
G398	10.6	0.0	17.4	7.6	24.4	10.1	3.6	9.0	11.4	6.0	28	42	30	704	0.7		
G399	19.0	0.0	31.0	0.0	2.5	2.5	0.0	0.0	22.5	22.5	50	5	45	797	0.8		
G400	30.4	0.0	49.6	0.0	0.0	5.0	2.6	0.0	5.0	7.5	80	5	15	588	0.7		
G401	23.9	0.0	39.1	21.2	0.0	1.8	7.0	3.8	0.0	3.2	63	23	14	532	0.7		
G402	14.4	0.0	23.6	20.4	7.4	9.3	12.5	12.5	0.0	0.0	38	37	25	631	0.3		
G403	70.4	0.0	9.6	15.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	721	0.1		
G404	37.0	0.0	5.0	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	587	0.2		
G405	24.6	0.0	3.4	7.6	24.4	10.1	7.5	3.6	7.2	11.7	28	42	30	788	0.6		
G406	44.0	0.0	6.0	0.0	2.5	2.5	12.6	16.2	9.9	6.3	50	5	45	967	0.7		
G407	70.4	0.0	9.6	0.0	0.0	5.0	1.8	4.5	5.7	3.0	80	5	15	855	0.7		
G408	66.4	0.0	7.6	21.2	0.0	1.8	0.0	0.0	7.0	7.0	63	23	14	798	0.5		
G409	33.4	0.0	4.6	17.4	13.7	5.9	4.3	0.0	8.3	12.5	38	37	25	768	0.4		
G410	67.6	12.0	10.4	16.2	4.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	80	20	0	667	0.2		
G411	30.2	6.3	5.5	29.0	29.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	42	58	0	559	0.3		
G412	20.2	4.2	3.6	7.6	24.4	10.1	0.0	15.0	15.0	0.0	28	42	30	798	0.6		
G413	36.0	7.5	6.6	0.0	2.5	2.5	4.6	11.3	18.0	11.3	50	5	45	939	0.7		
G414	57.6	12.0	10.4	0.0	0.0	5.0	3.8	1.8	3.6	5.9	80	5	15	793	0.7		
G415	45.4	9.5	8.2	21.2	0.0	1.8	3.9	5.0	3.1	2.0	63	23	14	719	0.4		
G416	27.4	5.7	4.9	14.8	9.3	13.0	3.0	7.5	9.5	5.0	38	37	25	770	0.3		

【0060】〔試作3〕前記〔試作1〕で製作したガラス誘電体組成物粉末のうち、請求項1で示した組成を満足するものを64種類（下記表14に記載のF001～F064）を選び、各ガラス誘電体組成物粉末100g秤量したのに対して、予め樹脂（エチルセルロース）6gを溶剤（ α -テルピネオール）30gに溶解させた有機ビヒクルを添加し、更に三本ロールミルで十分混練して、64種類（F001～F064）のガラス誘電体ペーストを製作した。

【0061】次に、試験用として導電ペースト7種類（P01～P07）を以下の調合比率及び製作方法で製作した。

P01：Agペースト：銀（Ag）粉末75重量%、樹脂（エチルセルロース）5重量%を溶剤（ α -テルピネオール）18重量%に溶解させた有機ビヒクル及び無機添加物（シリカ粉末）2%とを三本ロールミルで混練したペースト

* P02：Ag/Pdペースト：銀（Ag）粉末49重量%、パラジウム（Pd）粉末21重量%、樹脂（エチルセルロース）5重量%を溶剤（ α -テルピネオール）23重量%に溶解させた有機ビヒクル及び無機添加物（シリカ粉末）2%とを三本ロールミルで混練したペースト

P03：Cuペースト：銅（Cu）粉末65重量%、樹脂（エチルセルロース）5重量%を溶剤（ α -テルピネオール）7重量%を溶解させた有機ビヒクル及び無機添加物（シリカ粉末）3%とを三本ロールミルで混練したペースト

P04：Cu/Zn混合ペースト：Cu粉末52重量%、亜鉛（Zn）粉末13重量%、樹脂（アクリル酸樹脂）7重量%を溶剤（ブチルカルビトール）17重量%と溶剤（ α -テルピネオール）18重量%に溶解させた有機ビヒクルを三本ロールミルで混練したペースト。

P05：Niペースト：ニッケル（Ni）粉末60重量%、樹脂（エチルセルロース）5重量%を溶剤（ α -テルピネオール）18重量%に溶解させた有機ビヒクルを三本ロールミルで混練したペースト。

* 50 樹脂（エチルセルロース）5重量%を溶剤（ α -テルピネオール）18重量%に溶解させた有機ビヒクルを三本ロールミルで混練したペースト。

ネオール) 20重量%と溶剤(ブチルカルビトールアセテート) 15重量%に溶解させた有機ビヒクルとを三本ロールミルで混練したペースト。

P06: Ni/Co混合ペースト: Ni粉末60重量%、コバルト(Co)粉末6重量%、樹脂(エチルセルロース) 6重量%を溶剤(α -テルピネオール) 28重量%に溶解させた有機ビヒクルとを三本ロールミルで混練したペースト。

P07: Ni/Co/Fe混合ペースト: Ni粉末48重量%、コバルト(Co)粉末6重量%、鉄(Fe)粉末6重量%、樹脂(ポリビニールブチラル) 8重量%を溶剤(α -テルピネオール) 30重量%に溶解させた有機ビヒクル及び無機添加物(シリカ粉末) 2重量%とを三本ロールミルで混練したペースト。

【0062】次に、図5に示した断面構造を有する平板形コンデンサ素子を成型するために、市販のアルミナ磁器製基板(寸法長さ50×幅50×厚さ0.6mm、アルミナ含有量95%以上)上に前記64種類のガラス誘電体ペースト(FP01~FP64)と7種類の導電ペースト(P01~P07)を表14に示した組合せで使用して、スクリーン印刷法によりコンデンサ素子を成型した。

【0063】続いて、当該コンデンサ素子を脱脂後、焼成及びメッキ工程を経て平板形コンデンサ素子を完成させた。

【0064】本試作の試験試料(下記表14に記載)は全て以下の通りの(イ)~(ト)の手順及び条件で製作した。

(イ) アルミナ磁器製基板の片面に導電ペーストをスクリーン印刷後、保持温度120℃にした乾燥機で10分間乾燥し、下側電極層を形成した。

(ロ) ガラス誘電体ペーストを下側電極層の片側一部分を除いた全面にスクリーン印刷後、保持温度120℃にした乾燥機で10分間乾燥しガラス誘電体粉末層を形成した。

(ハ) ガラス誘電体粉末層の上面に下側電極層印刷に使用したものと同一導電ペーストを再度スクリーン印刷後、保持温度120℃にした乾燥機で10分間乾燥し、上側電極層を形成した。

(ニ) 上側電極層の片側一部分を除いた全面にガラス誘電体粉末層印刷に使用したものと同一ガラス誘電体ペーストを再度スクリーン印刷後、保持温度120℃にした乾燥機で10分間乾燥し被覆用ガラス誘電体粉末層を形

成した。

(ホ) 脱脂: 印刷・乾燥を全て終了した焼成前のコンデンサ素子を焼成前に誘電体と電極の焼結を阻害する樹脂分を除去するため、アルミナ製磁器基板ごと温度350℃(大気中)で2時間保持して樹脂分を分解・燃焼させた。

(ヘ) 焼成: 脱脂が終了した焼成前コンデンサ素子を所定の保持時間に達するまでの昇温時間を1時間、保持時間を20分又は30分、保持後の冷却時間を約1時間に設定した焼成炉(内容積約20L)で焼成した。なお、保持温度は焼成後のガラス粉末誘電体の気孔率が3%以下になるまで適宜設定を変更して試験を行った。また、焼成雰囲気ガスには、空気、窒素、水素1%混合の窒素、水素2%混合の窒素、一酸化炭素2%混合した窒素及び水素2%と一酸化炭素1%を混合した窒素を適宜使い分けた。各々の焼成雰囲気ガスは昇温開始から冷却終了まで連続して流量10L/分で流し入れた。また、焼成雰囲気ガスの加湿はガラス製ガス洗浄ビン中に純水を入れ、その周囲を所定の温度に保温し、その内部に焼成雰囲気ガスを通過させることで一定量の水分を加える方法を採用した。流入した雰囲気ガスの露点測定はミラー式露点計を使って測定した。更に、炉内の酸素濃度の測定はジルコニア式酸素濃度計を使って測定した。

(ト) メッキ: 焼成後のコンデンサ素子の両端部に露出した上下電極層に電解式メッキ装置を使い、ニッケルメッキ膜と錫メッキ膜を各々数 μ mの厚みになるように施し、平板形コンデンサ素子を完成させた。

【0065】次に、上記平板形コンデンサ素子における誘電体特性の計測は、比誘電率はLCRメータ(測定条件: 周波数1kHz、印加電圧1V、25℃)で測定した静電容量と対向する上下電極の公差面積及びガラス粉末誘電体層の厚みから算出し、誘電損失もLCRメータ(測定条件: 周波数1kHz、印加電圧1V、25℃)で測定した。また、絶縁抵抗値は絶縁抵抗計(測定条件: 直流電圧25V、1分間印加、25℃)を使用して測定した。更に、焼結体気孔率測定はコンデンサ素子からガラス粉末誘電体層の一部を採取し、比重ビン(アルキメデスの原理)を使って計測した。焼結体気孔率は次の計算式から算出した。

【0066】焼結体気孔率 = $\{1 - (\text{焼結体の比重} \div \text{焼結前のガラス粉末の比重})\} \times 100 (\%)$

【0067】

【表11】

ガラス粉末誘電体組成物の平均粒子径、軟化点及び不純物含有量測定結果例

ガラス誘電体 試料番号	試料番号	ガラス誘電体粉末		不純物含有率 mol%	主な不純物 元素
		平均粒子径 (μm)	軟化点 ($^{\circ}\text{C}$)		
G001	F001	1.1	737	1.3	Al, Zr, Fe
G002	F002	1.5	759	1.6	"
G003	F003	1.9	748	1.4	"
G004	F004	2.6	773	1.7	"
G005	F005	1.3	760	1.3	"
G006	F006	2.0	795	1.4	"
G007	F007	1.9	775	1.3	"
G008	F008	2.8	829	1.8	"
G009	F009	1.0	715	1.4	"
G010	F010	1.4	677	1.4	"
G011	F011	1.8	730	1.5	"
G012	F012	2.3	683	1.2	"
G013	F013	1.3	760	1.3	"
G014	F014	1.7	699	1.4	"
G015	F015	1.9	774	1.9	"
G016	F016	2.4	721	1.3	"
G017	F017	1.0	670	1.2	"
G018	F018	1.4	717	1.6	"
G019	F019	1.7	680	1.4	"
G020	F020	2.4	732	1.5	"
G021	F021	1.2	691	1.4	"
G022	F022	1.8	728	1.6	"
G023	F023	1.8	706	1.3	"
G024	F024	2.7	799	1.5	"
G025	F025	1.0	676	1.6	"
G026	F026	1.2	818	1.2	"
G027	F027	1.7	697	1.5	"
G028	F028	2.1	828	1.3	"
G029	F029	1.2	715	1.9	"
G030	F030	1.6	643	1.3	"
G031	F031	1.9	740	1.5	"
G032	F032	2.2	863	1.3	"
G033	F033	0.9	604	1.2	"
G034	F034	1.4	680	1.6	"
G035	F035	1.5	617	1.1	"
G036	F036	2.3	702	1.5	"
G037	F037	1.0	628	1.3	"
G038	F038	1.8	716	1.5	"
G039	F039	1.6	643	1.3	"
G040	F040	2.5	750	1.5	"
G041	F041	1.0	675	1.8	"
G042	F042	1.2	615	1.2	"
G043	F043	1.7	695	1.5	"
G044	F044	2.1	625	1.3	"
G045	F045	1.2	712	1.5	"
G046	F046	1.6	638	1.4	"
G047	F047	1.8	737	1.6	"
G048	F048	2.2	659	1.4	"
G049	F049	0.8	675	1.3	"
G050	F050	1.3	662	1.5	"
G051	F051	1.5	588	1.2	"
G052	F052	2.3	685	1.7	"
G053	F053	1.0	600	1.3	"
G054	F054	1.7	698	1.6	"
G055	F055	1.5	613	1.3	"
G056	F056	2.4	732	1.7	"
G057	F057	1.9	637	1.5	"
G058	F058	1.1	558	1.3	"
G059	F059	1.6	656	1.5	"
G060	F060	1.9	559	1.1	"
G061	F061	1.1	673	1.6	"
G062	F062	1.4	571	1.2	"
G063	F063	1.5	596	1.5	"
G064	F064	1.2	595	1.4	"

注) 軟化点はガラス誘電体組成物粉末のものを示す。

【0068】

【表12】

使用した導電ペースト中の金属成分割合比率及び焼成雰囲気ガス

導電ペースト 番号	導電ペースト 金属成分割合比率	雰囲気 番号	焼成雰囲気 主成分ガス	炉内酸素 濃度	主成分ガスの 露点 (℃)	備考
P01	銀(Ag)粉末100%	Air	大気	18~20%	5~10	酸化性雰囲気
P02	Ag粉末: Pd/Pt(Pd)粉末 =30%:70%	Air	大気	18~20%	5~10	酸化性雰囲気
P03	銅(Cu)粉末100%	乾燥N2 加湿N2	窒素(N2)ガス 加湿窒素(N2)ガス	<20ppm <100ppm	-30~-50 20±2	不活性ガス雰囲気 不活性ガス雰囲気
P04	銅(Cu)粉末: 亜鉛(Zn)粉末 =80%:20%	乾燥N2 加湿N2	窒素(N2)ガス 加湿窒素(N2)ガス	<20ppm <100ppm	-30~-50 20±2	不活性ガス雰囲気 不活性ガス雰囲気
P05	ニッケル(Ni)粉末100%	乾燥H2/N2 加湿H2/N2	水素(H2)/N2 加湿水素(H2)/N2 =1%:99%混合ガス =2%:98%混合ガス	<10ppm <100ppm	-30~-50 30±2	還元性ガス雰囲気 還元性ガス雰囲気
P06	Ni粉末: Pd/Cr粉末 =90%:10%	乾燥CO/N2 加湿CO/N2	一酸化炭素(CO)/N2 加湿一酸化炭素(CO)/N2 =2%:98%混合ガス =2%:1%:97%混合ガス	<10ppm <100ppm	-20~-30 40±2	還元性ガス雰囲気 還元性ガス雰囲気
P07	Ni粉末: Cr粉末: 鉄(Fe)粉末 =80%:10%:10%	加湿H2/CO/N2	加湿H2/CO/N2	<100ppm		還元性ガス雰囲気

(20)

特開2003-146697

38

【0069】

【表13】

10

20

30

使用した磁器誘電体組成物

磁器誘電体粉末 試料番号	磁器誘電体粉末化学式	構成元素比率 (mol比)	磁器誘電体粉末用原料割合比率 (重量比)					
			BaCO ₃	CaCO ₃	SrCO ₃	TiO ₂	ZrO ₂	MgO
C01	BaTiO ₃	BaO/TiO ₂ =1.002	712.28	—	—	287.72	—	—
C02	SrTiO ₃	SrO/TiO ₂ =1.003	—	—	649.46	350.54	—	—
C03	CaTiO ₃	CaO/TiO ₂ =1.005	—	557.31	—	442.67	—	—
C04	BaTiO ₃	BaO/TiO ₂ =1.005	—	—	—	563.61	—	336.39
C05	CaZrO ₃	CaO/ZrO ₂ =0.999	—	448.03	—	—	551.97	—
C06	(Mg-Ca)O-TiO ₂	(MgO+CaO)/TiO ₂ =1.004	—	72.38	—	534.92	—	292.70
C07	(Ba-Ca)O-TiO ₂	CaO/BaO=0.1	690.24	17.53	—	292.23	—	—
C08	(Ba-Sr)O-TiO ₂	(BaO+SrO)/TiO ₂ =1.002	701.10	—	10.39	288.52	—	—
C09	(Ba-Sr-Ca)O-TiO ₂	(BaO+SrO)/TiO ₂ =1.003 =1.005 SrO/BaO=0.12	586.79	53.46	52.53	307.22	—	—
C10	(Mg-Ca)O-(Ti-Zr)O ₂	(MgO+CaO)/(TiO ₂ +ZrO ₂) =1.005 CaO/MgO=0.06 ZrO ₂ /TiO ₂ =0.25	—	43.02	—	482.69	185.73	288.56
C11	(Ba-Ca)O-(Ti-Zr)O ₂	(BaO+CaO)/(TiO ₂ +ZrO ₂) =1.004 CaO/BaO=0.1	666.11	33.83	—	286.97	13.09	—
C12	(Ba-Sr-Ca)O-(Ti-Zr)O ₂	(BaO+SrO+CaO)/(TiO ₂ +ZrO ₂) =1.006 SrO/BaO=0.13 CaO/BaO=0.04 ZrO ₂ /TiO ₂ =0.1	620.21	12.62	60.18	265.94	41.06	—

【0070】

* * 【表14】

ガラス誘電体ペースト 焼成試験結果例

ガラス誘電体粉末 試料番号	ガラス誘電体 ペースト番号	導電ペースト 番号	焼成温度 (℃)	保持時間 (分)	焼成ガス雰囲気 (雰囲気略号)	焼結体気孔率 (%)	比誘電率	誘電損失 (%)	絶縁抵抗値 (GΩ)
F001	FP01	P01	780	20	Air	2.4	8.2	1.4	≧10
F002	FP02	P02	810	30	Air	2.5	11.7	2.0	≧10
F003	FP03	P03	800	30	乾燥N2	2.5	8.3	1.4	≧10
F004	FP04	P03	820	30	加温N2	2.6	11.9	2.0	≧10
F005	FP05	P04	810	30	乾燥N2	2.5	8.4	1.4	≧10
F006	FP06	P05	850	30	乾燥N2/N2	2.7	12.1	2.0	≧10
F007	FP07	P05	830	30	加温N2/N2	2.6	8.5	1.4	≧10
F008	FP08	P06	880	30	乾燥CO/N2	2.8	11.9	2.0	≧10
F009	FP09	P07	760	20	加温N2/CO/N2	2.4	11.3	1.9	≧10
F010	FP10	P01	730	20	Air	2.3	8.2	1.4	≧10
F011	FP11	P02	780	20	Air	2.4	11.4	1.9	≧10
F012	FP12	P03	740	20	加温N2	2.3	8.3	1.4	≧10
F013	FP13	P03	810	30	乾燥N2	2.5	11.6	1.9	≧10
F014	FP14	P04	750	20	加温N2	2.3	8.3	1.4	≧10
F015	FP15	P05	830	30	加温N2/N2	2.6	11.7	2.0	≧10
F016	FP16	P05	770	20	乾燥CO/N2	2.4	8.3	1.4	≧10
F017	FP17	P06	720	20	加温N2/CO/N2	2.3	8.4	1.4	≧10
F018	FP18	P07	770	20	乾燥N2/N2	2.4	11.8	2.0	≧10
F019	FP19	P01	730	20	Air	2.3	8.5	1.4	≧10
F020	FP20	P02	780	20	Air	2.4	12.0	2.0	≧10
F021	FP21	P03	740	20	乾燥N2	2.3	8.6	1.4	≧10
F022	FP22	P03	780	20	加温N2	2.4	12.1	2.0	≧10
F023	FP23	P04	760	20	乾燥N2	2.4	8.7	1.5	≧10
F024	FP24	P05	850	30	乾燥CO/N2	2.7	12.0	2.0	≧10
F025	FP25	P05	730	20	加温N2/CO/N2	2.3	11.2	1.9	≧10
F026	FP26	P06	670	20	乾燥N2/N2	2.1	8.0	1.3	≧10
F027	FP27	P07	750	20	加温N2/N2	2.3	11.3	1.9	≧10
F028	FP28	P01	680	20	Air	2.1	8.1	1.4	≧10
F029	FP29	P02	770	20	Air	2.4	11.5	1.9	≧10
F030	FP30	P03	690	20	加温N2	2.2	8.2	1.4	≧10
F031	FP31	P03	790	20	乾燥N2	2.5	11.6	1.9	≧10
F032	FP32	P04	720	20	加温N2	2.3	8.1	1.4	≧10
F033	FP33	P05	680	20	加温N2/CO/N2	2.1	7.5	1.3	≧10
F034	FP34	P05	730	20	乾燥N2/N2	2.3	11.3	1.9	≧10
F035	FP35	P06	670	20	加温N2/N2	2.1	7.6	1.3	≧10
F036	FP36	P07	750	20	乾燥CO/N2	2.3	11.5	1.9	≧10
F037	FP37	P01	680	20	Air	2.1	7.7	1.3	≧10
F038	FP38	P02	770	20	Air	2.4	11.6	1.9	≧10
F039	FP39	P03	690	20	乾燥N2	2.2	7.8	1.3	≧10
F040	FP40	P03	800	30	加温N2	2.5	11.5	1.9	≧10
F041	FP41	P04	730	20	乾燥N2	2.3	11.7	2.0	≧10
F042	FP42	P05	670	20	乾燥N2/N2	2.1	8.8	1.5	≧10
F043	FP43	P05	750	20	加温N2/N2	2.3	11.8	2.0	≧10
F044	FP44	P06	680	20	乾燥CO/N2	2.1	8.9	1.5	≧10
F045	FP45	P07	760	20	加温N2/CO/N2	2.4	11.9	2.0	≧10
F046	FP46	P01	690	20	Air	2.2	8.9	1.5	≧10
F047	FP47	P02	790	20	Air	2.5	12.1	2.0	≧10
F048	FP48	P03	710	20	加温N2	2.2	8.9	1.5	≧10
F049	FP49	P03	630	20	乾燥N2	2.0	7.9	1.3	≧10
F050	FP50	P04	710	20	加温N2	2.2	11.5	1.9	≧10
F051	FP51	P05	640	20	加温N2/N2	2.0	8.0	1.3	≧10
F052	FP52	P05	740	20	乾燥CO/N2	2.3	11.7	2.0	≧10
F053	FP53	P06	650	20	加温N2/CO/N2	2.0	8.1	1.4	≧10
F054	FP54	P07	750	20	乾燥N2/N2	2.3	11.8	2.0	≧10
F055	FP55	P01	670	20	Air	2.1	8.2	1.4	≧10
F056	FP56	P02	780	20	Air	2.4	11.7	2.0	≧10
F057	FP57	P03	690	20	乾燥N2	2.2	10.9	1.8	≧10
F058	FP58	P03	610	20	加温N2	1.9	7.4	1.2	≧10
F059	FP59	P04	710	20	乾燥N2	2.2	11.0	1.8	≧10
F060	FP60	P05	610	20	乾燥CO/N2	1.9	7.5	1.3	≧10
F061	FP61	P05	730	20	加温N2/CO/N2	2.3	11.2	1.9	≧10
F062	FP62	P06	630	20	乾燥N2/N2	1.9	7.6	1.3	≧10
F063	FP63	P07	650	20	加温N2/N2	2.0	11.3	1.9	≧10
F064	FP64	P01	650	20	Air	1.9	7.5	1.3	≧10

注) ガラス誘電体粉末試料番号は【表11】に記載の番号、導電ペーストは【表12】に記載の番号を示す。

【0071】[試作4]図6に示した断面構造を有するガラス・磁器複合型円板試料のコンデンサ素子を成型するために、前記[試作1]で製作したガラス誘電体組成物粉末のうち、請求項1で示した組成を満足するものを64種類(上記表14に記載のF001～F064)と表13に記載した磁器誘電体粉末12種類(上記表13に記載のC01～C12)とを表15に示した組合せ及び混合比率でガラス・磁器複合型誘電体を製作した。続いて、ガラス／磁器複合型誘電体を加圧成型し、導電ペースト(上記表12に記載のP01～P07)を印刷後、脱脂、焼成及びメッキ工程を経て円板形コンデンサ*50

40*素子を完成させた。

【0072】本試作の試験試料(下記表15に記載)は全て以下の通りの(イ)～(ヌ)の手順及び条件で製作した。

(イ) ガラス誘電体組成物粉末と磁器誘電体粉末とを所定重量比で秤量し、合計100gの混合粉末とした。

(ロ) 内容積約1Lのボールミルに混合粉末100gとイオン交換水100gを入れて15時間連続の混合攪拌を行った。

(ハ) 混合攪拌後の混合液体をステンレス製容器に移し、温度120℃で15時間乾燥して水分を蒸発させた

後、磁器乳鉢で解砕した。

(ニ) 解砕した粉末をアルミナ製匣鉢に入れ、昇温時間3時間、保持時間30分、降温時間約3時間に設定した焼成炉で仮焼してガラス／磁器複合型誘電体粉末を製作した。なお、仮焼温度(保持温度)は各ガラス粉末誘電体の軟化点より約20～30℃高い温度に設定した。

(ホ) ガラス／磁器複合型誘電体粉末80gに対して、ポリビニールアルコール樹脂2gを純水20g中に予め溶解させた水溶液を加えて充分混練した後、温度100℃で2時間乾燥させて造粒粉末を得た。

(ヘ) 造粒粉0.5gを秤量し、直径10mmの金型に入れて、圧力500kgf/cm²で加圧成型して円板形素子を成型した。

(ト) 円板形素子の片面に導電ペーストをスクリーン印刷法で印刷面直径9mmに印刷し、保持温度120℃にした乾燥機で10分間乾燥した後、対向面にも同一ペーストを同一条件で印刷・乾燥し、対向電極層を形成した。

(チ) 脱脂：印刷・乾燥を終了した焼成前の円板形素子

は〔試作3〕に記載の脱脂方法と同一条件で脱脂した。

(リ) 焼成：脱脂が終了した焼成前円板形素子を所定の保持時間に達するまでの昇温時間を5時間、保持時間を60分、降温時間を約5時間に設定した焼成炉(内容積約20L)で焼成した。

【0073】なお、保持温度は焼成後のガラス／磁器複合型誘電体の気孔率が3%以下になるまで適宜設定を変更して試験を行った。また、焼成試験に使用した焼成雰囲気ガスの種類、加湿方法、露点測定方法、炉内酸素濃度測定方法は〔試作3〕に記載の内容と同一とした。

(ヌ) メッキ：焼成後の円板形素子の対向電極層へのメッキ方法は〔試作3〕と同一装置を使い、ニッケルメッキ膜とスズ・鉛混成メッキ膜を各々数μmの厚みになるように施し円板形コンデンサ素子を完成させた。

【0074】なお、誘電体特性及び焼結体気孔率の計測も〔試作3〕と同一計測器を使い、同一条件で行った。

【0075】

【表15】

0.72/每疊混合形鋼電位組成物 四板325'21'組成物疊成結果例

[illegible]

11) 〃の調査依頼主の国番号は【表11】に記載の番号、郵便ペーストは【表12】に記載の番号を必ず。

前掲既述係数表は【表1.3】に記載したものを示す。

※印のあるものは本発明の範囲外である。

【0076】〔試作5〕図7に示した断面構造を有する積層形コンデンサ素子を成型するために、前記〔試作1〕で製作したガラス誘電体組成物の粉末のうち、請求項1で示した組成を満足するものを36種類（上記表14に記載のF001～F036）と表13に記載した磁器誘電体組成物の粉末12種類（表13に記載のC01～C12）とを表16に示した組合せ及び混合比率で、〔試作4〕と同じ手順及び条件にてガラス/磁器複合型誘電体組成物を製作した。

【0077】続いて、上記ガラス／磁器複合型誘電体組* 50

* 成物の粉末に樹脂、溶剤、可塑剤及び分散剤を混合してスラリーを作った後、ポリエステルフィルム上にドクターブレード法で塗工してシート化した。

【0078】次に、シートの片面に導電ペースト（上記表12に記載のP01～P07）をスクリーン印刷法で印刷したもの3枚を製作し、未印刷シート1枚を加えた合計4枚のシートを図7に示したように積み重ね、金型で加熱圧着した後、内部電極層が露出した対向面に再度電極ペーストを塗布・乾燥後、脱脂、焼成及びメッキ工程を経てガラス/磁器複合型誘電体組成物を材料とする。

積層形コンデンサ素子を完成させた。

【0079】上記試作の試験試料（下記表16に記載）は全て以下の通りの手順及び条件で製作した。

（イ）ガラス／磁器複合型誘電体粉末の製作手順及び諸条件は「試作4」と同一。

（ロ）ガラス／磁器複合型誘電体粉末1kgに対して、ポリビニルブチラール樹脂50g、エタノール150g及びトルエン150gを内容積約2Lのボールミル入れて15時間連続の混合攪拌を行った。

（ハ）混合攪拌後のスラリーをポリエステルフィルム上に塗工後、温度70℃で10分間乾燥して有機溶剤成分を蒸発させ、厚み約300μmのガラス／磁器複合型誘電体シートを製作した。

（ニ）シート片面に導電ペーストをスクリーン印刷法で印刷寸法5×5mmに印刷したものを3枚作り、未印刷のシート1枚を加えた合計4枚のシートを図7に示したように積み重ね90℃に加熱した金型に入れて圧力500kgf/cm²で加熱圧着した。

* ガラス／磁器複合型誘電体組成物 積層型コンデンサ焼成試験結果例

ガラス／磁器複合型誘電体粉末 材料番号	誘電体 粉末番号	ガラス／磁器複合型誘電体粉末 混合比率(重量%)	導電ペースト 番号	気孔率3%以下となった 焼成条件 焼成温度(℃) 保持時間(分)	焼成ガス雰囲気 (雰囲気番号)	焼結体 気孔率 (%)	比誘電率	焼成損失 (%)	絶縁抵抗値 (GΩ)
F001	C001	0.5:99.5	P02	1080 60	Air	2.3	3120	2.4	≥10
F002	C002	0.5:99.5	P05	1030 60	加温H2/N2	2.4	250	0.7	≥10
F003	C003	0.5:99.5	P06	1070 60	乾燥CO/N2	2.4	146	0.6	≥10
F004	C004	0.5:99.5	P07	1040 60	加温H2/CO/N2	2.4	55	0.3	≥10
F005	C005	0.5:99.5	P02	1070 60	Air	2.4	34	0.2	≥10
F006	C006	0.5:99.5	P05	1040 60	乾燥CO/N2	2.5	142	0.6	≥10
F007	C007	0.5:99.5	P06	1020 60	加温H2/CO/N2	2.4	2910	2.3	≥10
F008	C008	0.5:99.5	P07	1050 60	乾燥H2/N2	2.6	16270	1.3	≥10
F009	C009	0.5:99.5	P02	1030 60	Air	2.3	16380	1.4	≥10
F010	C010	0.5:99.5	P05	1050 60	加温H2/CO/N2	2.3	54	0.3	≥10
F011	C011	0.5:99.5	P06	1040 60	乾燥H2/N2	2.3	13080	1.2	≥10
F012	C012	0.5:99.5	P07	1080 60	加温H2/N2	2.3	13110	1.2	≥10
F013	C001	2.0:98.0	P02	1020 60	Air	2.2	2920	2.4	≥10
F014	C002	2.0:98.0	P05	990 60	乾燥H2/N2	2.2	240	0.5	≥10
F015	C003	2.0:98.0	P06	1030 60	加温H2/N2	2.3	135	0.7	≥10
F016	C004	2.0:98.0	P07	1000 60	乾燥CO/N2	2.3	57	0.4	≥10
F017	C005	2.0:98.0	P02	1040 60	Air	2.2	32	0.2	≥10
F018	C006	2.0:98.0	P05	1000 60	乾燥H2/N2	2.3	135	0.7	≥10
F019	C007	2.0:98.0	P06	1050 60	加温H2/N2	2.2	2760	2.4	≥10
F020	C008	2.0:98.0	P07	1020 60	乾燥CO/N2	2.3	15540	1.4	≥10
F021	C009	2.0:98.0	P02	990 60	Air	2.3	15580	1.6	≥10
F022	C010	2.0:98.0	P05	1020 60	乾燥CO/N2	2.3	47	0.4	≥10
F023	C011	2.0:98.0	P06	990 60	加温H2/CO/N2	2.4	12440	1.3	≥10
F024	C012	2.0:98.0	P07	1030 60	乾燥H2/N2	2.5	12410	1.2	≥10
F025	C001	5.0:95.0	P02	990 60	Air	2.3	2770	2.6	≥10
F026	C002	5.0:95.0	P05	1030 60	加温H2/CO/N2	2.1	227	0.8	≥10
F027	C003	5.0:95.0	P06	990 60	乾燥H2/N2	2.2	128	0.7	≥10
F028	C004	5.0:95.0	P07	1050 60	加温H2/N2	2.1	54	0.6	≥10
F029	C005	5.0:95.0	P02	1010 60	Air	2.3	36	0.3	≥10
F030	C006	5.0:95.0	P05	990 60	乾燥H2/N2	2.1	131	0.7	≥10
F031	C007	5.0:95.0	P06	1020 60	加温H2/N2	2.3	2570	2.7	≥10
F032	C008	5.0:95.0	P07	990 60	乾燥CO/N2	2.2	14760	1.6	≥10
F033	C009	5.0:95.0	P02	1030 60	Air	2.1	14770	1.5	≥10
F034	C010	5.0:95.0	P05	990 60	乾燥H2/N2	2.1	46	0.4	≥10
F035	C011	5.0:95.0	P06	1040 60	加温H2/N2	2.1	11780	1.5	≥10
F036	C012	5.0:95.0	P07	1000 60	乾燥CO/N2	2.2	11730	1.5	≥10

注) ガラス／磁器複合型誘電体粉末番号は【表11】に記載の番号、導電ペーストは【表12】に記載の番号を示す。

磁器複合型誘電体粉末は【表13】に記載したものを示す。

* (ホ) 次に加熱圧着体の電極印刷端が露出している2面に同一の電極ペーストを再度塗布し、積層形素子を製作した。

(ヘ) 脱脂及び焼成：積層形素子は「試作3」に記載した方法及び条件と同じに脱脂、焼成を行った。なお、保持温度は焼成後の積層形素子を構成するガラス／磁器複合型誘電体の気孔率が3%以下になるまで適宜設定を変更して試験を行った。また、焼成試験に使用した焼成雰囲気ガスの種類、加湿方法、露点測定方法、炉内酸素濃度測定方法は「試作3」と同一とした。

(ト) メッキ：焼成後の積層形素子の外部電極層へのメッキ方法は「試作3」と同一装置を使い、銅メッキ膜と錫メッキ膜を各々数μmの厚みになるように施し、積層形コンデンサ素子を完成させた。

【0080】誘電体特性及び焼結体気孔率の計測も「試作3」と同一計測器を使い、同一条件で行った。

【0081】

【表16】

【0082】

【発明の効果】本発明に係る誘電体組成物及びガラス／※50 ペースト及びコンデンサ素子は、上記のように構成され

※磁器複合型誘電体組成物と、それらを原料とする誘電体

ているため、

(1) 軟化点が400～960℃のガラス誘電体組成物を微粉碎したガラス誘電体組成物粉末を使用することで大気中、不活性ガス雰囲気中或いは還元ガス雰囲気中の何れにおいても焼成温度1000℃以下で、気孔率3%以下の緻密な焼結体と良好な誘電体特性を有するガラス誘電体ペーストの作製とそれを使ったコンデンサ素子を作製することができる。

(2) また、当該ガラス誘電体組成物粉末を磁器誘電体粉末に混合し、仮焼して成るガラス/磁器複合型誘電体組成物を使ってコンデンサ素子を焼成する場合でも、大気中、不活性ガス雰囲気中或いは還元ガス雰囲気中の何れにおいてもその焼成温度を1100℃以下でできるため、従来の誘電体材料に比較して消費エネルギーを大幅に低減できると共に発熱体、炉体及び匣鉢の寿命も著しく延ばすことができる。

(3) 更に、本発明のガラス/磁器複合型誘電体を使うことで、誘電体層と電極層とを交互に重ねて一体焼成する積層型磁器コンデンサにも応用ができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】第1群成分のSiO₂、B₂O₃、P₂O₅の調合比率を示す図である。

【図2】第2群成分のLi₂O、Na₂O、K₂Oの調合比率を示

す図である。

【図3】第3群成分のMgO、CaO、SrO、BaOの調合比率を示す図である。

【図4】第1群成分と第2群成分と第3群成分の調合比率を示す図である。

【図5】本発明に係る平板形コンデンサ素子断面構造図である。

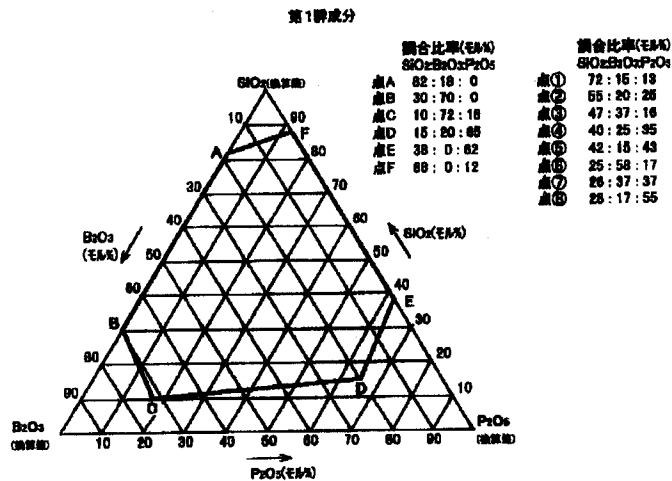
【図6】本発明に係るガラス/磁器複合型誘電体組成物を用いた円板形コンデンサ素子の断面構造図である。

【図7】本発明に係るガラス/磁器複合型誘電体組成物を用いた積層形コンデンサ素子の断面構造図である。

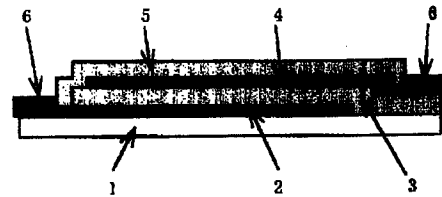
【符号の説明】

- 1 アルミナ製焼結基板
- 2 下側電極層
- 3 ガラス粉末誘電体層
- 4 上側電極層
- 5 被覆用ガラス粉末誘電体層
- 6 メッキ膜(Ni/Sn)
- 7 ガラス/磁器複合型誘電体(円板)
- 8 対向電極層
- 9 ガラス/磁器複合型誘電体
- 10 内部電極層
- 11 外部電極層

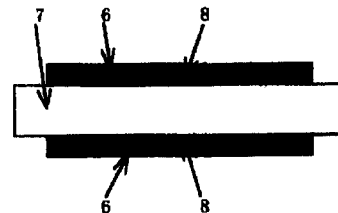
【図1】



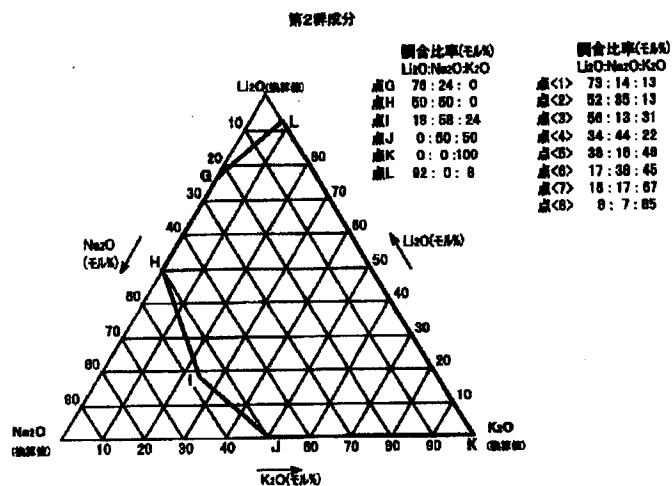
【図5】



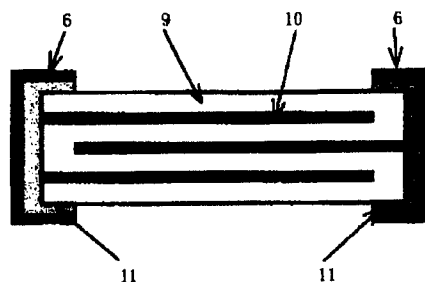
【図6】



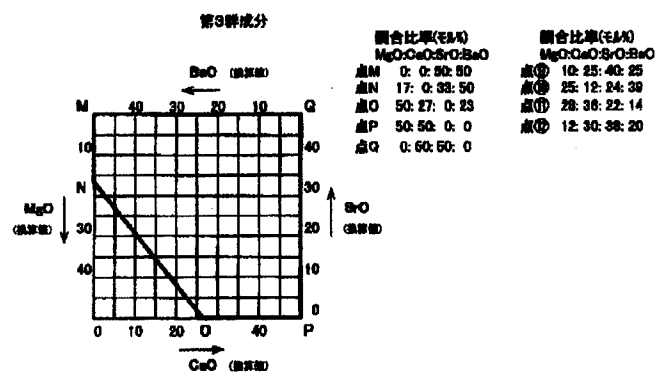
【図2】



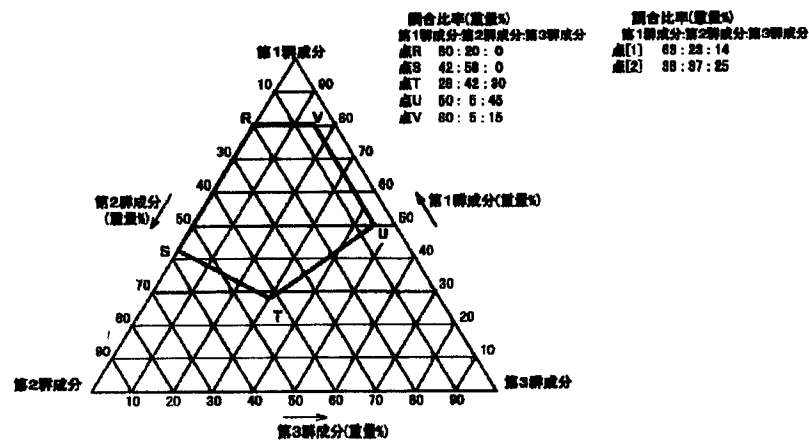
【図7】



【图3】



【図4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

ターム(参考)

H 0 1 B 3/08

C 0 4 B 35/00

Y

Fターム(参考) 4G030 AA03 AA04 AA07 AA08 AA09
 AA35 AA37 AA41 BA12 GA01
 GA03
 4G031 AA01 AA03 AA04 AA05 AA06
 AA12 AA28 AA30 AA33 BA09
 GA11
 4G062 AA09 BB01 CC10 DA03 DA04
 DA05 DA06 DA07 DB01 DC01
 DC02 DC03 DC04 DC05 DC06
 DD01 DD02 DD03 DD04 DD05
 DD06 DE01 DF01 EA01 EA02
 EA03 EA04 EA05 EA06 EA10
 EB01 EB02 EB03 EB04 EB05
 EC01 EC02 EC03 EC04 EC05
 EC06 ED01 ED02 ED03 ED04
 ED05 EE01 EE02 EE03 EE04
 EE05 EF01 EF02 EF03 EF04
 EF05 EG01 EG02 EG03 EG04
 EG05 FA01 FA10 FB01 FC01
 FD01 FE01 FF01 FG01 FH01
 FJ01 FK01 FL01 GA01 GA10
 GB01 GC01 GD01 GE01 HH01
 HH03 HH05 HH07 HH09 HH11
 HH13 HH15 HH17 HH20 JJ01
 JJ03 JJ05 JJ07 JJ10 KK01
 KK03 KK05 KK07 KK10 MM04
 NN40 PP01 PP02 PP03 PP04
 PP09 PP12 PP13 PP14
 5G303 AA01 AB15 AB20 CA02 CA09
 CB02 CB03 CB06 CB14 CB16
 CB17 CB20 CB24 CB30 CB32

End of Result Set

☐

L29: Entry 1 of 1

File: DWPI

May 21, 2003

DERWENT-ACC-NO: 2003-735916
DERWENT-WEEK: 200370
COPYRIGHT 2006 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Glass dielectric composition for use in powder and paste for making capacitors, to reduce porosity and energy consumption

PATENT-ASSIGNEE:

ASSIGNEE

MIWA DENZAI YG

CODE

MIWAN

PRIORITY-DATA: 2001JP-0347055 (November 13, 2001)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO

PUB-DATE

LANGUAGE

PAGES

MAIN-IPC

☐ JP 2003146697 A

May 21, 2003

028

C03C008/20

APPLICATION-DATA:

PUB-NO

APPL-DATE

APPL-NO

DESCRIPTOR

JP2003146697A

November 13, 2001

2001JP-0347055

INT-CL (IPC): C03C 8/20; C04B 35/00; C04B 35/46; C04B 35/49; H01B 3/00; H01B 3/08

ABSTRACTED-PUB-NO: JP2003146697A

BASIC-ABSTRACT:

NOVELTY - A glass dielectric composition has a raw material supplying silicon dioxide (SiO₂), and one or more raw material(s) supplying boron oxide (B₂O₃), phosphorus oxide (P₂O₅), lithium oxide (Li₂O), sodium oxide (Na₂O), potassium oxide (K₂O), magnesium oxide (MgO), calcium oxide (CaO), strontium oxide (SrO), and barium oxide (BaO). The raw materials are blended so that the glass has formula $a\text{SiO}_2 + b\text{B}_2\text{O}_3 + c\text{P}_2\text{O}_5 + d\text{Li}_2\text{O} + e\text{Na}_2\text{O} + f\text{K}_2\text{O} + g\text{MgO} + h\text{CaO} + i\text{SrO} + j\text{BaO}$; with less than 1 mol.% inorganic impurities.

DETAILED DESCRIPTION - A glass dielectric composition has a raw material supplying silicon dioxide (SiO₂), and one or more raw material supplying boron oxide (B₂O₃), phosphorus oxide (P₂O₅), lithium oxide (Li₂O), sodium oxide (Na₂O), potassium oxide (K₂O), magnesium oxide (MgO), calcium oxide (CaO), strontium oxide (SrO), and barium oxide (BaO). The raw materials are blended so that the glass has formula $a\text{SiO}_2 + b\text{B}_2\text{O}_3 + c\text{P}_2\text{O}_5 + d\text{Li}_2\text{O} + e\text{Na}_2\text{O} + f\text{K}_2\text{O} + g\text{MgO} + h\text{CaO} + i\text{SrO} + j\text{BaO}$; with less than 1 mol.% inorganic impurities.

a = 1.8-70.4;

b = 0-57.6;

c = 0-52.0;

d = 0-62.56;

e = 0-39.44;

f = 0-68.0;

g = 0-34.0;

h = 0-34.0;

i = 0-34.0; and

j = 0-34.0.

INDEPENDENT CLAIMS are also included for the following:

(i) a glass dielectric powder obtained by grinding particles of average particle size 0.5-5.0 microns m, and maximum particle size less than 100 microns m, where the powder contains not more than 3 mol.% inorganic impurities;

(ii) a glass/ceramic composite dielectric composition with inorganic impurities of 2 mol.% or less, obtained by mixing the powder of (i) with ceramic dielectric powder in a weight ratio of 0.5:99.5-5.0:95.0 and sintering at 1000 deg. C or less in air with dew point 50 deg. C or less;

(iii) a glass dielectric paste formed by mixing 30-90 wt.% of the glass powder of (i) with 2-20 wt.% of a resin (R) with a mean molecular weight of less than 1000000 and 8-50 wt.% of water or organic solvent (S) with boiling point up to 300 deg. C at atmospheric pressure;

(iv) a capacitor element formed by applying the paste of (iii) and a conductive paste (CP) made by mixing 25-80 wt.% of powdered silver (Ag), gold (Au), platinum (Pt), palladium (Pd), copper (Cu), zinc (Zn), aluminum (Al), nickel (Ni), iron (Fe), and/or chromium (Cr); 2-20 wt.% (R); 18-45 wt.% of (S); and 0-10 wt.% powdered silica (SiO₂), alumina (Al₂O₃), zirconia (ZrO₂), and/or titanium-oxide (TiO₂) to a dielectric substrate as a single layer or multi-layer, and baking in air or inert gas or reducing atmosphere (all with dew point 50 deg. C or less); and

(v) a capacitor element formed by molding a slurry to a board, cylinder, or sheet; applying (CP) to the surface and sintering as for (iv).

The slurry is made by adding (R) and (S) to the glass/ceramic composite dielectric of (ii), where the ceramic dielectric is a powder with average particle diameter 10 microns m or less and maximum particle size 200 microns m, comprising MZO₃, (M1M2)O.ZO₂ or (M1M2M3)O.ZO₂.

M = Ba, Sr, Ca or Mg;

M1M2 = Mg.Ca, Ba.Ca or Ba.Sr;

M1M2M3 = Ba.Sr.Ca; and

Z = Ti or Ti.Zr

with mole ratios M to Ti of 1.0 +/-0.1; M1 to M2 of 1:0.01-0.2; M1 to M3 of 1:0.01-0.2; and Ti to Zr of 1:0.01-0.3.

USE - Used for low-cost capacitor elements with fine structure.

ADVANTAGE - The resin decomposes completely, so that the sintered compact has porosity of 3% or less even with a sintering temperature of below 1000 deg. C. Air, inert gas, or reducing gas may all be used. The lower sintering temperature reduces energy consumption and prolongs the life of heat source, furnace, and sagger. A laminated ceramic capacitor with alternating dielectric layers and electrode layers can be produced. Holding time at maximum sintering temperature can be reduced to below 1 hour.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/7

TITLE-TERMS: GLASS DIELECTRIC COMPOSITION POWDER PASTE CAPACITOR REDUCE POROUS ENERGY CONSUME

DERWENT-CLASS: L03 V01 X12

CPI-CODES: L03-B03E;